

Etude des propriétés statiques des noyaux : utilisation de lasers

François Le Blanc

Institut de Physique Nucléaire

91406 Orsay Cedex

Résumé : Dans ce cours, on présente les différents paramètres nucléaires que l'on peut mesurer par spectroscopie laser. On décrit tout d'abord la structure hyperfine, celle-ci permettant, par la mesure des paramètres d'interaction électron-noyau, d'extraire les moments magnétique et quadrupolaire nucléaires ainsi que la variation du rayon carré moyen de charge du noyau sur une chaîne isotopique. On présente ensuite différentes techniques expérimentales de spectroscopie laser permettant d'accéder à ces grandeurs : la spectroscopie colinéaire et la spectroscopie par ionisation résonnante. Enfin, on montre que pour accéder à des grandeurs d'un ordre supérieur dans la structure hyperfine ou étudier l'anomalie hyperfine pour mieux caractériser la fonction d'onde du neutron, l'application d'un champ magnétique extérieur est indispensable. Les différentes méthodes de double spectroscopie laser plus radiofréquence sont alors détaillées.

Abstract : We present here the nuclear parameters which can be deduced from laser spectroscopy measurements. The hyperfine structure is first described since it allows, from the measurements of the electron-nucleus interaction parameters, the extraction of the nuclear magnetic and quadrupole moments as well as the mean square charge radius variation along an isotope series. For this purpose, different experimental laser spectroscopy techniques can be used : the colinear laser spectroscopy and the Resonance Ionization Spectroscopy methods. Finally, to get the 3rd and 4th order in the hyperfine structure or to study the hyperfine anomaly (which is essential to characterize the neutron wave function), one has to apply an external magnetic field. The different double laser-plus-radiofrequency spectroscopy methods are thus described.

INTRODUCTION

En physique nucléaire, l'étude de la forme des noyaux est un sujet fondamental puisqu'elle permet la compréhension du comportement de la matière nucléaire à basse ou à haute énergie d'excitation. En effet, les mouvements du noyau dans son état fondamental ou excité sont directement liés à sa déformation par l'intermédiaire des orbites nucléaires qu'occupent les nucléons de valence. La mesure des moments quadrupolaire électrique (signant la forme du noyau) et dipolaire magnétique apporte des renseignements très précieux pour les études de structure nucléaire. En particulier, les valeurs des moments magnétiques sont importantes à déterminer car elles sont fortement liées au degré de pureté des fonctions d'onde décrivant une configuration nucléaire donnée.

La spectroscopie atomique, et plus particulièrement la spectroscopie laser, est un moyen précis pour caractériser des observables liées à la forme du noyau : on extrait la variation du rayon de charge entre deux noyaux à partir du déplacement isotopique, et le moment quadrupolaire à l'aide de la structure hyperfine. Ce type de spectroscopie permet également d'atteindre directement le moment magnétique (par la structure hyperfine) pour ainsi caractériser les états nucléaires. Par ailleurs, l'étude du problème fondamental de l'interaction faible en physique nucléaire est aussi une question abordable grâce à l'anomalie hyperfine. Cette dernière permet de quantifier l'influence de la distribution magnétique nucléaire sur le cortège électronique et ainsi de fournir des informations précieuses sur les effets de non-conservation de parité ou sur les caractéristiques de la fonction d'onde du neutron.

De nombreuses chaînes isotopiques ont été étudiées par spectroscopie laser et on peut citer 4 régions de la table de masse. La région des noyaux légers autour du lithium où la spectroscopie laser a permis d'approfondir l'étude des noyaux à halos. Une grande région intermédiaire de l'oxygène jusqu'aux terres rares où chaque traversée d'une couche magique dans une série isotopique s'accompagne d'une brusque rupture de la pente de la variation du rayon de charge. Une troisième région du plomb 208 doublement magique jusqu'aux super-lourds où des zigzags pairs impairs de la variation du rayon ont été interprétés comme signant des effets octupolaires, notamment dans le radium. Et la quatrième région qui est sans doute la plus intéressante est celle située aux alentours de $A=190$ (entre les terres rares et le plomb 208). En

effet, de nombreuses transitions de forme et de changements de déformation entre isotopes voisins ainsi que des coexistences de formes dans un même noyau ont été mises en évidence dans cette dernière région. En particulier, l'étude du côté "loin de la stabilité" des noyaux déficients en neutrons par la mesure des paramètres liés à leur forme constitue une contrainte sévère pour la définition des modèles nucléaires.

Depuis environ 30 ans et le développement continu des lasers, de nombreuses méthodes de spectroscopie laser ont été employées et appliquées à la physique nucléaire. Une des meilleures méthodes pour atteindre ces grandeurs est la spectroscopie colinéaire grâce à l'excellente résolution des spectres hyperfins qu'elle permet d'obtenir. Cependant, les mesures sont effectuées directement sur les faisceaux d'ions produits, par exemple, par un séparateur en ligne et il est donc très difficile d'étudier les éléments réfractaires. Néanmoins, si on attend la décroissance d'atomes radioactifs et que l'on crée sa propre source d'ions, ces éléments deviennent accessibles. Pour cette raison l'expérience COMPLIS (COLlaboration for spectroscopy Measurements using a Pulsed Laser Ion Source) utilise la désorption d'atomes réfractaires couplée à la spectroscopie laser par ionisation résonante. Ces deux types de spectroscopie permettent d'obtenir des précisions de l'ordre de 1 % sur le moment magnétique et de 5 % sur le moment quadrupolaire. Si maintenant on désire obtenir une précision de 10^{-6} - 10^{-9} sur le moment magnétique (pour étudier l'anomalie hyperfine), mesurer des moments quadrupolaires de l'ordre du millibarn (dans les noyaux légers) ou étudier les effets hyperfins au troisième et quatrième ordre afin d'obtenir des moments octupolaires et hexadécapolaires, on doit alors appliquer un champ extérieur sur l'atome et utiliser la radiofréquence pour effectuer la spectroscopie atomique. Le laser est dans ce cas employé pour peupler les niveaux électroniques à partir duquel on balayera la radiofréquence.

La première partie de cours est consacrée aux concepts de structure hyperfine et de déplacement isotopique. Après un rapide zoom sur l'atome en passant par la structure fine, nous décrirons ce qui est observé avec la structure hyperfine en décomposant celle-ci en deux : la partie magnétique et la partie électrostatique. Nous montrerons ensuite comment est extraite la variation du rayon de charge nucléaire à partir du déplacement isotopique. Finalement, nous verrons qu'en appliquant un champ extérieur à l'atome nous pouvons rentrer à l'intérieur du multiplet hyperfin et donc d'avoir accès à des quantités nucléaires beaucoup plus précises.

La deuxième partie sera consacrée aux techniques expérimentales utilisées en spectroscopie laser. Nous décrirons principalement les expériences avec détection de photons

(spectroscopie colinéaire) et les expériences avec détection d'ions (spectroscopie par ionisation résonante).

Dans la troisième partie, nous présenterons le degré de précision atteint sur les grandeurs nucléaires quand un champ extérieur est appliqué à l'atome. Nous décrirons trois types d'expérience utilisant la radiofréquence : les expériences β -NMR pour mesurer des moments quadripolaires de faibles valeurs, les expériences de type ABMR pour étudier l'anomalie hyperfine par la mesure du facteur g_I nucléaire à haute précision et enfin les expériences utilisant des trappes d'ions pour observer la structure hyperfine aux ordres supérieurs.

L'INTERACTION HYPERFINE

I. La structure fine

Au sein d'un atome, les forces prédominantes sont les forces de type coulombien.

L'Hamiltonien d'un atome hydrogénéoïde de masse M s'écrit alors : $H_0 = \frac{p^2}{2M} - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 R}$, où le premier terme représente son énergie cinétique et le deuxième terme l'énergie d'interaction entre l'électron et le noyau quand celui-ci est vu comme un point chargé. Les énergies propres des niveaux de l'atome s'écrivent alors $E_n = -RhcZ^2/n^2$ ¹⁾ (voir Fig. 1).

Quand on tient compte des effets relativistes dus aux mouvements rapides de l'électron et des effets magnétiques liés au spin de celui-ci, la dégénérescence des niveaux n est levée en sous-niveaux j . L'hamiltonien de l'atome s'écrit alors $H = H_0 + W$. En toute rigueur on doit utiliser l'équation de Dirac pour décrire W et répondre à la fois aux postulats de la mécanique quantique et à ceux de la relativité restreinte. On se contentera ici de donner les premiers termes du développement en $\frac{v}{c}$ de W : $H = m_e c^2 + H_0 + W_{mv} + W_{SO} + W_D$, où W_{mv} est le terme d'énergie cinétique relativiste, W_{SO} le terme d'interaction spin-orbite et W_D le terme de Darwin.

Le premier terme représente la variation de la masse de l'électron avec la vitesse et s'exprime comme $W_{mv} = -\frac{p^4}{8m_e^3 c^2}$ ²⁾. Son ordre de grandeur est le suivant:

$$\frac{W_{mv}}{H_0} \cong \frac{\frac{p^4}{8m_e^3 c^2}}{\frac{p^2}{2m_e}} = \frac{p^2}{4m_e^2 c^2} = \frac{1}{4} \left(\frac{v}{c} \right)^2 \cong \alpha^2 = \left(\frac{1}{137} \right)^2 \text{ avec, pour l'atome d'hydrogène, } v = e^2/\hbar \text{ et}$$

$\alpha = e^2/\hbar c$. On retrouve donc bien la constante de structure fine et l'ordre de grandeur de 10^{-4} qui apparaît Fig. 1.

Le deuxième terme, W_{SO} , représente l'interaction entre le moment magnétique de l'électron et le champ magnétique créé par le mouvement de celui-ci dans le champ électrostatique du

noyau. Il s'exprime en fonction de son spin S et de son moment orbital L . Il s'écrit alors comme : $W_{SO} = \frac{e^2}{m_e^2 c^2} \frac{1}{R^3} L S^2$. Si on considère que L et S sont de l'ordre de \hbar et que H_0 est de l'ordre de e^2/R , son ordre de grandeur est le suivant :

$$\frac{W_{SO}}{H_0} \cong \frac{\frac{e^2 \hbar^2}{m_e^2 c^2 R^3}}{\frac{e^2}{R}} = \frac{\hbar^2}{m_e^2 c^2 R^2} \cong \frac{e^4}{\hbar^2 c^2} = \alpha^2 = \left(\frac{1}{137} \right)^2, \text{ où } R \text{ est de l'ordre du rayon de Bohr :}$$

$a_0 = \hbar^2 / m_e e^2$. On retrouve là encore la constante de structure fine et le facteur 10^{-4} .

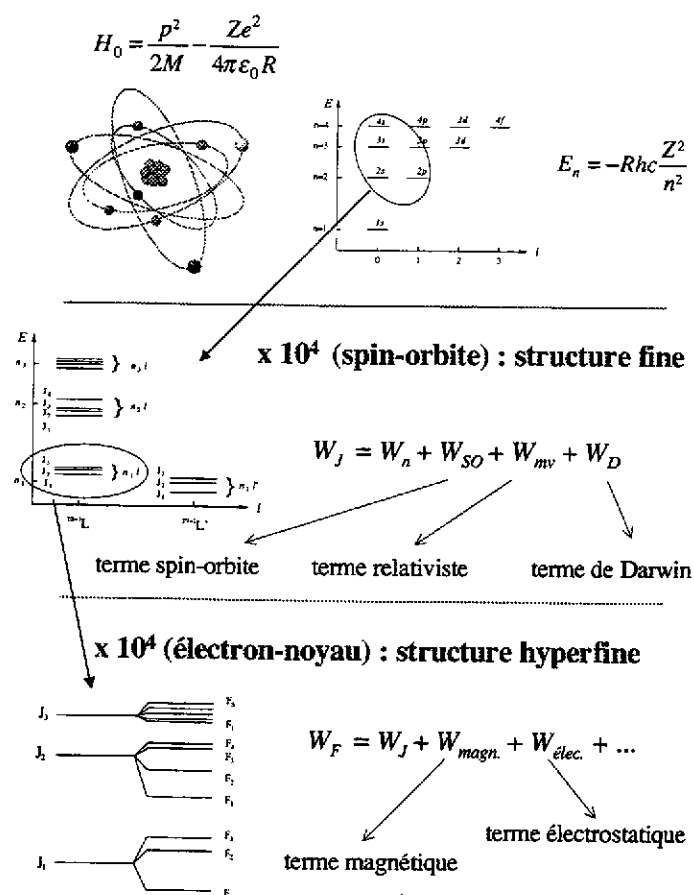


Figure 1: Grossissement de l'atome jusqu'à la structure hyperfine.

Le terme de Darwin, W_D , est dû au fait que l'interaction $V(R)$ entre l'électron et le champ coulombien crée par le noyau n'est pas locale mais a lieu sur tout le volume de l'atome. W_D

s'exprime alors comme : $W_D = \frac{\hbar^2}{8m_e^2 c^2} \Delta V(R) = \frac{-Ze^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{\hbar^2}{8m_e^2 c^2} \Delta \left\langle \frac{1}{R} \right\rangle^2$ pour un atome

hydrogénéoïde. Pour estimer son ordre de grandeur on considère que la valeur moyenne de $\Delta \langle 1/R \rangle$ dans un état atomique est de l'ordre de $|\Psi(0)|^2$ où $\Psi(0)$ est la valeur de la fonction d'onde à l'origine. Son module $|\Psi(0)|^2$ étant de l'ordre de $\frac{1}{a_0^3}$ (la fonction d'onde est prise sur

tout le volume de Bohr), on a $\frac{W_D}{H_0} \cong \frac{\frac{\pi e^2 \hbar^2}{2m_e^2 c^2} \frac{m_e^3 e^6}{\hbar^6}}{m_e c^2 \alpha^2} = \alpha^2 = \left(\frac{1}{137} \right)^2$ (avec $H_0 = e^2/R$ et $R \cong a_0$).

Chacun des trois termes (W_{SO} , W_{mv} et W_D) contribuant à la structure fine est donc 10.000 fois plus petit que H_0 .

II. La structure hyperfine

Jusqu'ici, le noyau était considéré comme un point matériel de masse M_n et de charge Ze . Or, l'électron se déplace à la fois dans le champ électrostatique du noyau et dans le champ magnétique crée par le moment magnétique μ_I de celui-ci. Si le noyau a un spin I non nul, μ_I interagira avec le champ magnétique \vec{H}_0 crée par le mouvement des électrons de moment orbital l et de spin s . \vec{H}_0 est donc proportionnel au moment angulaire total de l'électron J . Cette interaction lèvera la dégénérescence sur les niveaux atomiques de structure fine. Il apparaîtra alors un nombre N_F de niveaux hyperfins ($|I-J| \leq N_F \leq I+J$) de spin atomique F . D'autre part, si on ne considère plus le noyau comme un point chargé mais ayant une extension spatiale de sa charge, l'interaction électrostatique produit une correction par rapport à l'énergie de Coulomb qui s'exprime comme le produit de Q_s par dV , où Q_s est le moment quadrupolaire du noyau et dV le gradient de champ électrique produit par les électrons sur le noyau : les niveaux électroniques seront ainsi déplacés en énergie et ceci uniquement si la distribution de charge électronique ou nucléaire n'est pas sphérique (spin I et J différents de 0

et 1/2) : ce fait est exploité pour mesurer les paramètres de forme nucléaire comme on le verra plus tard.

Donc dans l'étude de la structure hyperfine, les quantités que l'on mesurera seront les termes d'interactions. Dans ceux-ci, on cherchera toujours à séparer la partie atomique de la partie nucléaire.

A. L'interaction magnétique

En électrodynamique classique, on peut exprimer l'énergie d'interaction magnétique entre le noyau et les électrons en terme de densité de courant électronique $\vec{\eta}$ et de potentiel vecteur nucléaire \vec{A} . Cette énergie s'écrit alors : $V_{\text{magn}} = - \int \vec{A} \cdot \vec{\eta} d\tau$.

\vec{A} peut être développé (en dehors du noyau) en puissance de r^{-1} . Il devient alors en première approximation le potentiel nucléaire d'un point magnétique : $\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\vec{\mu}_I \times \vec{r}}{r^3}$.

Ainsi, dans V_{magn} , la quantité $\frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{\vec{r} \times \vec{\eta}}{r^3} d\tau$ représente le champ magnétique $H(0)$ crée par les électrons au centre du noyau. V_{magn} s'exprime alors comme : $V_{\text{magn}} = -\mu_I H(0) \cos(\mu_I, H(0))$.

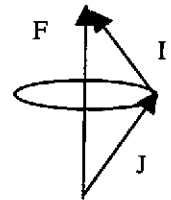
En développant μ_I et $H(0)$ sur la base (I, J), on obtient $W_{\text{magn}} = -\mu_I H(0) \cos(I, J)$.

Avec $\cos(I, J) = \frac{F^2 - I^2 - J^2}{2IJ}$ (cf dessin), on a $W_{\text{magn}} = \frac{\mu_I H(0) C}{2IJ}$

où $C = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$.

On appellera $A = \frac{\mu_I H(0)}{IJ}$ la constante magnétique de structure hyperfine. L'ordre de grandeur de $H(0)$ est d'environ 10^6 Gauss.

La partie d'interaction étant bien définie, il faut maintenant déterminer $H(0)$ pour extraire le moment magnétique à partir de la mesure de A ; $H(0)$ étant la partie électronique, il est constant sur une chaîne isotopique et ne dépend que de Z . Il peut être déterminé de deux manières : par le calcul, ou expérimentalement.



1) Calcul de $H(0)$

$H(0)$ s'exprime comme : $H(0) = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{2\mu_B}{h} \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{nl}$ où $\langle 1/r^3 \rangle_{nl}$ représente l'intégrale

radiale de l'électron se déplaçant dans le champ créé par le noyau. Son calcul est extrêmement difficile puisqu'il faut développer $\langle 1/r^3 \rangle_{nl}$ sur toutes les configurations trou-électron du niveau atomique. On doit donc calculer chaque contribution à la constante magnétique de structure hyperfine pour chaque configuration électron-trou³⁾. Lorsqu'il s'agit d'un électron s l'expression de $H(0)$ est plus simple: $H_{ns}(0) = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{2\mu_B}{h} \frac{8\pi}{3} |\Psi(0)|_{ns}^2$, où $|\Psi(0)|_{ns}^2$ représente la densité de probabilité de présence de l'électron s dans le noyau. Nous verrons par la suite comment est calculé $|\Psi(0)|_{ns}^2$.

2) Détermination expérimentale de $H(0)$.

C'est le moyen le plus souvent employé : si on connaît avec précision le moment magnétique d'un isotope (stable par exemple), on détermine $H(0)$ à partir d'une mesure du A de cet isotope. Cela signifie que le rapport A/μ_I est constant sur une chaîne isotopique. C'est vrai à quelques pour cents près (entre 1 et 10 %) à cause de l'anomalie hyperfine.

3) L'anomalie hyperfine

Jusqu'à présent, nous avons représenté le noyau comme un point magnétique. Or, dans les éléments lourds par exemple, la distribution magnétique s'étend sur tout le volume du noyau. Ainsi, sur une chaîne isotopique, cette distribution vue par l'électron est différente d'un isotope à l'autre. C'est ce qu'on appelle l'effet Bohr-Weisskopf qui introduit une légère perturbation sur $H(0)$ ⁴⁾. La constante magnétique de structure hyperfine A s'écrit alors : $A = A_{pt}(1 + \epsilon)$, où A_{pt} est la valeur de A pour un noyau "point". Avec $A_{pt} = \mu_I H(0) / IJ$ et $\mu_I = Ig_I$, on a pour deux isotopes de masse M_1 et M_2 :

$$\frac{A_{M_1}}{A_{M_2}} = \frac{g_I(M_1)}{g_I(M_2)} \left(\frac{1 + \epsilon_1}{1 + \epsilon_2} \right) \cong \frac{g_I(M_1)}{g_I(M_2)} (1 + {}^1\Delta^2) , \text{ avec } {}^1\Delta^2 = (\epsilon_1 - \epsilon_2) \text{ obtenu à partir du}$$

développement limité : $(1 + \epsilon_1)(1 + \epsilon_2)^{-1} \cong (1 + \epsilon_1)(1 - \epsilon_2) \cong 1 + \epsilon_1 - \epsilon_2$.

${}^1\Delta^2$ est appelée anomalie hyperfine entre deux isotopes. Elle est de l'ordre de quelques millièmes et pourra atteindre quelques centièmes aux alentours des masses 200.

B. L'interaction électrostatique

À partir du moment où le noyau possède une extension spatiale de sa charge, l'interaction de Coulomb doit être remplacée par une expression plus générale représentant l'énergie électrostatique. Pour la structure hyperfine, on rajoute à cette énergie de Coulomb un terme prenant en compte la densité spatiale de la charge nucléaire. L'énergie électrostatique s'écrit donc:

$$V_{elec.} = e \int_0^{\tau_0} \rho_n \cdot \phi_e d\tau - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0} \int_0^{\tau_0} \frac{\rho_e d\tau}{r}, \text{ où } e\rho_n \text{ et } e\rho_e \text{ représentent les densités de charge}$$

nucléaire et électronique, ϕ_e le potentiel électrostatique des électrons orbitaux et $d\tau$ le volume élémentaire. On peut montrer que V_{elec} se développe en deux termes multipolaires ¹⁾:

- un terme d'ordre dipolaire qui représente l'interaction entre le moment dipolaire électrique nucléaire et le champ électrique produit par les électrons sur le noyau. Ce moment est nul comme tous les moments d'ordre impair, à cause de la symétrie par rapport au plan équatorial que possède l'atome (deux points électriques symétriques de même potentiel pour E1, deux plans symétriques de même gradient de potentiel pour E3, etc.).

- un terme d'ordre quadrupolaire provoqué par l'interaction du gradient de champ électrique avec le moment quadrupolaire du noyau. Pour l'énergie du niveau atomique, l'énergie additionnelle, due à cette interaction, s'écrit: $W_Q = \frac{eQ_s \phi_{ZZ}(0)}{4} \left(\frac{3}{2} \cos^2 \theta - \frac{1}{2} \right)$ où ϕ_{ZZ} est le

gradient de champ créé par le mouvement des électrons dans le noyau et moyenné suivant la direction Oz. On identifie θ par l'angle formé entre l'axe d'inertie du noyau I et celui du cortège

électronique J . Le gradient ϕ_{ZZ} devient alors ϕ_{JJ} . Ainsi, $W_Q = \frac{eQ_s \phi_{JJ}(0)}{4} \left(\frac{3}{2} \cos^2(I, J) - \frac{1}{2} \right)$.

Comme pour l'interaction magnétique, on utilise le spin total F de l'atome pour exprimer ces énergies électrostatiques.

$$\text{On obtient finalement : } W_Q = eQ_s \phi_{JJ}(0) \cdot \left(\frac{3/2 \cdot C(C+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{4I(2I-1)J(2J-1)} \right),$$

avec $C = F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)$.

On appellera $B = eQ_s \phi_{JJ}$ la constante électrostatique de structure hyperfine. L'ordre de grandeur de grandeur de ϕ_{JJ} est d'environ 10^{21} V/m². De la même manière qu'avec l'interaction magnétique, il faut maintenant déterminer ϕ_{JJ} pour extraire le moment quadrupolaire à partir

de la mesure de B . Le paramètre ϕ_{JJ} est purement électronique et peut aussi être déterminé de deux manières (comme $H(0)$).

1) Calcul de ϕ_{JJ}

Pour une distribution de charge $e\rho_e$, le potentiel électrostatique à l'origine du noyau s'écrit

$$\text{classiquement : } \phi_{JJ}(0) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} e \int \frac{\rho_e}{r} d\tau.$$

On peut montrer qu'un traitement quantique de cette expression conduit à :

$$\phi_{JJ}(0) = \pm \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{2j-1}{2j+2} \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{nl}^{(1)}. \text{ Le signe } \pm \text{ provient du fait qu'il s'agit d'un électron ou d'un}$$

trou, $j=l\pm 1/2$ et $\langle 1/r^3 \rangle_{nl}$ représente toujours l'intégrale radiale de l'électron dans l'atome. Il s'agit de la même quantité qui intervient dans le calcul de $H(0)$ et on l'obtient par des calculs MCDF⁵⁾ (Multi-Configuration-Dirac-Fock) comme nous verrons par la suite.

2) Détermination expérimentale de $\phi_{JJ}(0)$

De la même façon que pour déterminer $H(0)$, il faut connaître le moment quadrupolaire d'un isotope. On détermine donc $\phi_{JJ}(0)$ par la mesure du B de cet isotope. Cela suppose que B/Q_s soit constant. Encore une fois, ceci est vrai à quelques pour cents près car il apparaît ici un autre effet appelé effet Sternheimer⁶⁾ qui perturbe cette constance. En effet, les autres électrons s et $p_{1/2}$ présents dans le noyau "écrantent" Q_s vu par l'électron utilisé pour la transition atomique. On introduit alors une correction calculée semi-empiriquement pour une sous-couche l ⁷⁾.

C. Les transitions hyperfines

Deux types de transitions apparaissent :

- 1) Les transitions entre différents multiplets de structure hyperfine : ce sont les transitions dipolaires électriques qui ont lieu entre niveaux de parités différentes. Pour les électrons périphériques, l'ordre de grandeur de l'énergie de ces transitions est de 10^4 GHz soit quelques électronvolts (ce qui correspond au rayonnement visible ou ultra-violet).

2) Les transitions à l'intérieur d'un multiplet : ce sont les transitions magnétiques dipolaires qui ont lieu entre niveaux de même parité. L'ordre de grandeur de ces transitions est de quelques GHz (transitions dans le domaine de la radiofréquence).

Pour ces deux types de transitions, la règle de sélection est la suivante : $\Delta F=0, \pm 1$ avec $F=0 \rightarrow F'=0$ interdit.

En pratique, les expériences de spectroscopie laser seront effectuées sur des transitions dipolaires électriques et les expériences de spectroscopie radiofréquence sur des transitions dipolaires magnétiques.

La figure 2 représente la structure hyperfine de l'atome ^{189}Pt obtenue par spectroscopie laser.

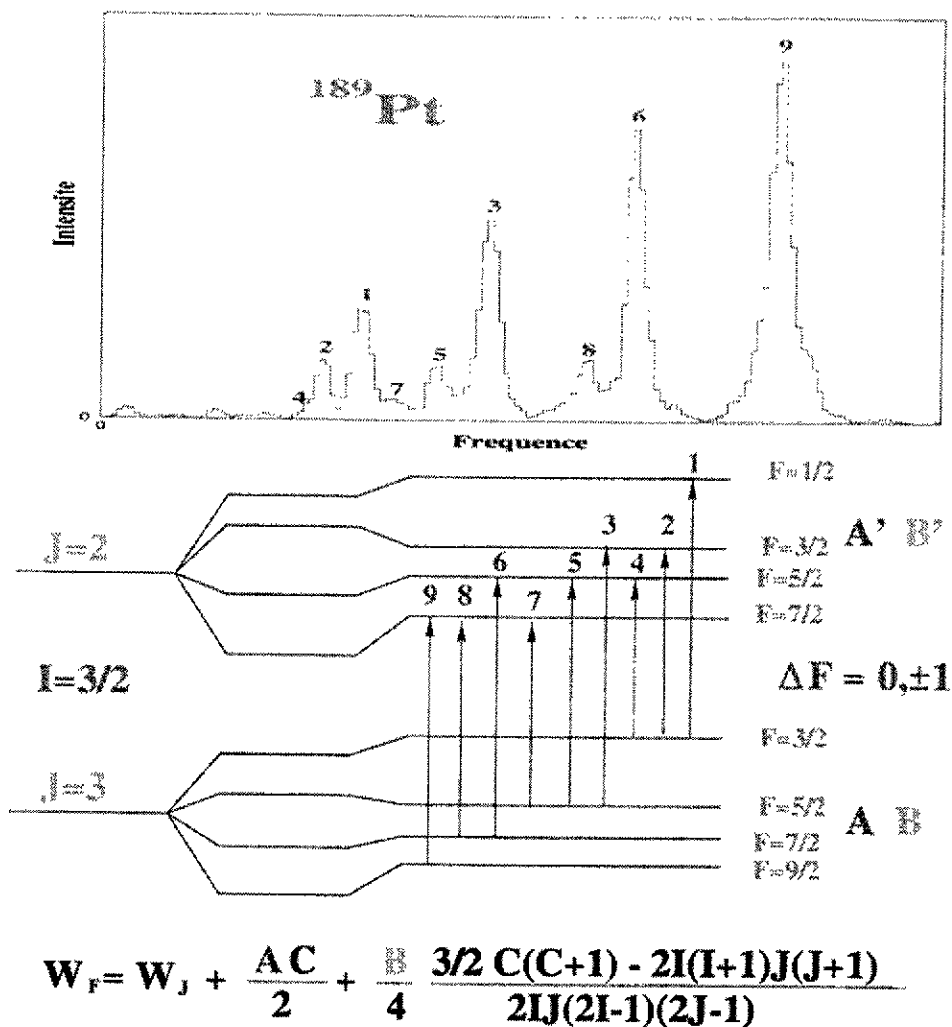


Figure 2 : Structure hyperfine de l'isotope ^{189}Pt .

Chaque transition du spectre hyperfin peut être identifiée grâce à son intensité. Ces dernières sont calculées selon la méthode de Russel et Saunders ⁸⁾. Chaque niveau hyperfin ayant une

énergie bien définie en fonction de I , J et F (cf. Fig. 2), on peut par différences de transitions hyperfines du spectre, extraire les 4 constantes de structure hyperfine : A et B pour l'état atomique fondamental et A' et B' pour l'état excité. On remonte ainsi aux moments nucléaires après avoir déterminé les parties électroniques $H(0)$ et $\phi_{IJ}(0)$.

III. Le déplacement isotopique

Quand on étudie une série isotopique, on mesure les spectres hyperfins de tous les isotopes accessibles et en les plaçant les uns en dessous des autres à la même échelle. On s'aperçoit que le centre de gravité de chaque structure hyperfine se déplace en fonction de la fréquence (voir Fig. 3) : c'est le déplacement isotopique.

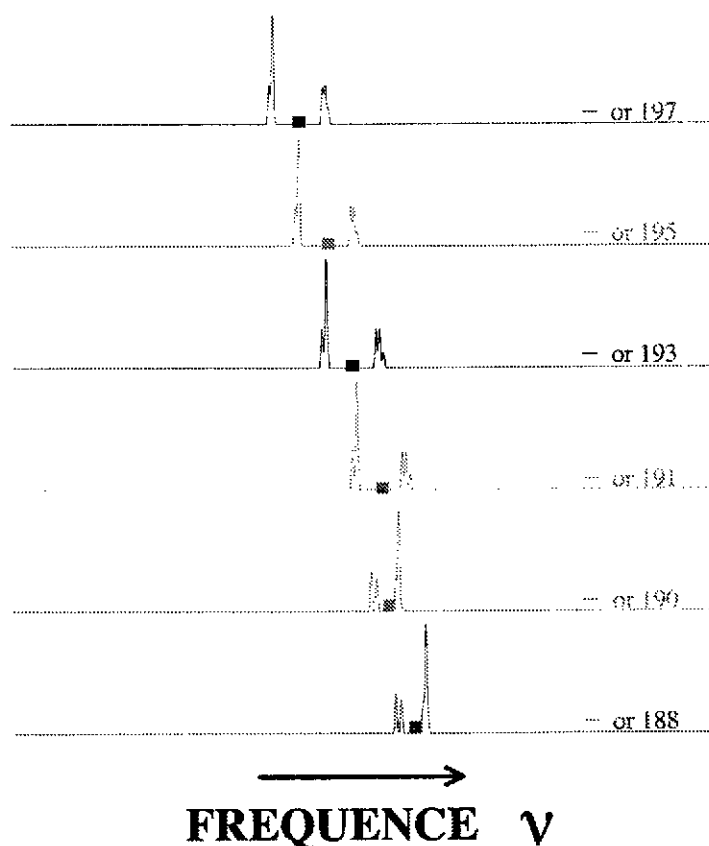


Figure 3 : Déplacement isotopique de quelques atomes d'or.

Deux effets doivent alors être pris en compte : le déplacement isotopique de masse dû à la différence d'énergie cinétique du système électron-noyau entre deux isotopes et le

déplacement isotopique de volume dû à la différence d'extension spatiale de la charge électrique entre deux noyaux.

A. Le déplacement isotopique de masse.

Cet effet s'explique de la manière suivante : quand la masse A de l'atome augmente entre deux isotopes, l'énergie cinétique totale de l'atome augmente et on aura ainsi un déplacement des niveaux électroniques en $1/A^2$. Le déplacement isotopique de masse comporte deux termes cinétiques : un terme électron-noyau et un terme électron-cortège-noyau.

La résultante des impulsions de tous les électrons $\vec{P}_e = \sum_{i=1}^Z \vec{P}_i$. L'énergie cinétique

totale est donc $T_e = \sum_{i=1}^Z \frac{\vec{P}_i^2}{2m_e}$.

Pour le noyau, son impulsion dans le centre de masse de l'atome $\vec{P}_N = -\vec{P}_e = -\sum_{i=1}^Z \vec{P}_i$

car on a conservation de l'impulsion.

Son énergie cinétique est donc $T_N = \frac{\vec{P}_N^2}{2M_N} = \frac{\left(\sum_{i=1}^Z \vec{P}_i\right)^2}{2M_N} = \sum_{i=1}^Z \frac{\vec{P}_i^2}{2M_N} + \sum_{i<j} \frac{\vec{P}_i \cdot \vec{P}_j}{M_N}$.

L'énergie cinétique totale de l'atome $T_A = T_N + T_e$, d'où $T_A = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{M_N} + \frac{1}{m_e} \right) \sum_{i=1}^Z \vec{P}_i^2 + \sum_{i<j} \frac{\vec{P}_i \cdot \vec{P}_j}{M_N}$

Avec $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{M_N} + \frac{1}{m_e}$ masse réduite de l'atome, on a : $T_A = \sum_{i=1}^Z \frac{\vec{P}_i^2}{2\mu} + \sum_{i<j} \frac{\vec{P}_i \cdot \vec{P}_j}{M_N}$.

Le premier terme, $T_1 = \sum_{i=1}^Z \frac{\vec{P}_i^2}{2\mu}$ (interaction électron-noyau) est appelé effet normal de

masse. Entre deux niveaux atomiques, il dépend de la fréquence les séparant : $T_A = h\nu_A$. Si on

suppose qu'il n'y a pas d'effet dû à la masse au noyau, la fréquence ν_A deviendra ν , fréquence de structure fine (sans interaction électron-noyau). Comme cette dernière ne dépend pas de la masse de l'isotope, cela revient à considérer le noyau avec une masse infinie; on écrit alors :

$$T_\infty = h\nu = \sum_{i=1}^Z \frac{\vec{P}_i^2}{2m_e}.$$

Avec $\mu = m_A$ et $\sum_{i=1}^Z \vec{P}_i^2 = 2\mu h\nu_A = 2m_e h\nu$, on a :

- pour un atome de masse A : $\nu_A = \frac{m_e}{m_A} \nu$

- pour un atome de masse A' : $\nu_{A'} = \frac{m_e}{m_{A'}} \nu$.

Entre deux isotopes A et A', on aura donc la variation de fréquence suivante :

$$\Delta\nu_{AA'} = m_e \nu \left(\frac{1}{m_A} - \frac{1}{m_{A'}} \right), \text{ ou encore } \Delta\nu_{AA'} \equiv m_e \nu \left(\frac{A' - A}{AA'} \right). \text{ C'est donc l'effet normal de}$$

masse appelé également effet de Bohr qui est aisément calculable.

Le deuxième terme $T_2 = \sum_{i < j} \frac{\vec{P}_i \cdot \vec{P}_j}{M_N}$ représente l'interaction entre l'électron, le cortège

et le noyau : c'est l'effet spécifique de masse.

Il peut être positif ou négatif et est difficile à calculer car il dépend des corrélations entre les électrons. Il peut être estimé de deux manières:

- 1) Par le calcul : calculs Hartree-Fock non relativistes pour déterminer la fonction d'onde atomique totale ⁹⁾, calculs MCHF (Hartree-Fock multiconfigurationnel) où la fonction d'onde est développée sur un mélange d'états ¹⁰⁾, ou encore par des calculs à N corps pour les atomes légers ¹¹⁾.
- 2) Par des méthodes semi-empiriques c'est-à-dire en utilisant des données expérimentales sur des transitions connues. On peut utiliser pour cela d'autres transitions optiques ou bien des transitions de rayonnement X ou muonique ¹²⁾. Il s'agit alors d'un King-Plot, méthode que nous détaillerons par la suite.

Indépendamment de la méthode utilisée, les transitions du type $ns \rightarrow np$ ou $ns^2 \rightarrow np$ semblent correspondre à un faible effet spécifique de masse ¹³⁾. Ainsi à partir d'une compilation sur des variations de rayons carrés moyens de charge sur la plupart des éléments et pour plusieurs transitions, la valeur de $\delta v_{SMS}^{A,A'}$ (déplacement isotopique spécifique de masse) a été estimé comme :

$$\delta v_{SMS}^{A,A'} = (0,3 \pm 0,9) \delta v_{NMS}^{A,A'} \text{ pour une transition } ns \rightarrow np$$

$\delta v_{SMS}^{A,A'} = (0 \pm 0,5) \delta v_{NMS}^{A,A'}$ pour une transition $ns^2 \rightarrow nsnp$ ¹³⁾ où $\delta v_{NMS}^{A,A'}$ est l'effet normal de masse.

En résumé, le déplacement isotopique de masse s'écrit comme :

$$\Delta v_{A,A'}^{Masse} = \left(\frac{A'-A}{AA'} \right) \left(\frac{m_e}{m_p} v + k_s \right) \text{ où } k_s \text{ correspond à l'effet spécifique de masse. Comme cet}$$

effet est en $1/A^2$, il est grand pour les masses légères et petit pour les masses lourdes. Sa valeur peut atteindre 10^5 GHz pour l'hydrogène et 0,1 GHz pour l'or ($A \approx 200$). Il devient très petit devant l'effet de volume pour $A \geq 100$.

B. Le déplacement isotopique de volume.

Ce déplacement isotopique est dû à la variation de la densité de charge d'un isotope à l'autre qui est ressentie par les électrons s et $p_{1/2}$ présents dans le noyau. Quand on augmente le nombre de neutrons le long d'une chaîne isotopique, la densité globale de charge volumique du noyau diminue et donc le gradient de champ électrique vu par ces électrons diminue. Leurs niveaux atomiques se resserrent alors d'autant plus que les noyaux sont riches en neutrons. Ceci diminue la différence d'énergie (ou fréquence) d'un isotope à l'autre. Comme le rayon de charge d'un noyau est directement lié au nombre de nucléons (typiquement en une loi en $A^{1/3}$), le déplacement isotopique de volume est proportionnel à la différence du rayon carré moyen de charge nucléaire.

On peut donc écrire la variation d'énergie qui a lieu entre deux isotopes A_1 et A_2 pour un niveau (ou électron) s ou $p_{1/2}$ ¹⁾ : $\delta W_{A_1 A_2} = \int_0^{r_0} e \rho_e(r) \delta \phi(r) 4\pi r^2 dr$, où $\rho_e(r)$ est la densité de

charge électronique dans la région du noyau et $\delta\phi(r)$ la variation du potentiel nucléaire entre les deux noyaux.

Maintenant, entre deux niveaux e_1 et e_2 on peut développer cette différence de fréquence en quatre termes croisés niveau-isotope ¹⁴⁾:

$$\delta v_{A_1 A_2} = -e^2 \iint dr dr' \frac{1}{|r - r'|} \times \{ [\rho_{A_1}(r) \cdot \rho_{e_1}(r') - \rho_{A_1}(r) \cdot \rho_{e_2}(r')] - [\rho_{A_2}(r) \cdot \rho_{e_1}(r') - \rho_{A_2}(r) \cdot \rho_{e_2}(r')] \}$$

où $\rho_{A_i}(r)$ est la distribution de la charge nucléaire de l'isotope A_i et $|r - r'|$ représente la différence de rayon entre les deux isotopes. La densité électronique ρ_e à l'intérieur du noyau peut s'exprimer sous forme polynômiale comme $\rho = a_0 + a_2 r^2 + a_4 r^4 + \dots$

Ainsi, on peut écrire chacune des quatre intégrales de l'expression ci-dessus sous la forme suivante :

$$\frac{2\pi}{3} Z e^2 a_0 \langle r^2 \rangle^A + \frac{\pi}{5} Z e^2 a_2 \langle r^4 \rangle^A + \frac{2\pi}{21} Z e^2 a_4 \langle r^6 \rangle^A + \dots$$

et si on effectue la différence de celles-ci, on obtient finalement :

$$\delta v_{A_1 A_2}^{vol} = \frac{2\pi}{3} Z e^2 \left(\Delta a_0 \Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2} + \frac{3}{10} \Delta a_2 \Delta \langle r^4 \rangle_{A_1 A_2} + \frac{1}{7} \Delta a_4 \Delta \langle r^6 \rangle_{A_1 A_2} + \dots \right)$$

avec Δa_0 différence des densités électroniques au centre du noyau ($r=0$) entre les deux configurations (fondamentale et excitée). Δa_0 peut être aussi écrite comme $\Delta |\psi(0)|^2$.

$\Delta \langle r^\alpha \rangle_{A_1 A_2}$ est la différence des valeurs attendues de r^α sur la distribution de charge nucléaire des deux noyaux.

La dernière expression aura donc la forme suivante :

$$\delta v_{A_1 A_2}^{vol} = \frac{2\pi}{3} Z e^2 \Delta |\Psi(0)|^2 \left(\Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2} + \frac{3}{10} \frac{\Delta a_2}{\Delta a_0} \Delta \langle r^4 \rangle_{A_1 A_2} + \frac{1}{7} \frac{\Delta a_4}{\Delta a_0} \Delta \langle r^6 \rangle_{A_1 A_2} + \dots \right)$$

$$\delta v_{A_1 A_2}^{vol} = \frac{2\pi}{3} Z e^2 \Delta |\Psi(0)|^2 \Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2} \left(1 + \frac{3}{10} \frac{\Delta a_2}{\Delta a_0} \frac{\Delta \langle r^4 \rangle_{A_1 A_2}}{\Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2}} + \frac{1}{7} \frac{\Delta a_4}{\Delta a_0} \frac{\Delta \langle r^6 \rangle_{A_1 A_2}}{\Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2}} + \dots \right)$$

$$\delta v_{A_1 A_2}^{vol} = \frac{2\pi}{3} Z e^2 \Delta |\Psi(0)|^2 \Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2} \left(1 + \frac{C_2}{C_1} \frac{\Delta \langle r^4 \rangle_{A_1 A_2}}{\Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2}} + \frac{C_3}{C_1} \frac{\Delta \langle r^6 \rangle_{A_1 A_2}}{\Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2}} + \dots \right)$$

C_2/C_1 et C_3/C_1 sont appelés coefficients de Seltzer et ont été calculés pour tous les éléments à partir de déplacement isotopique sur des transitions X (pour l'état atomique $1s$)¹⁵⁾.

G. Torbhom *et al.*¹⁴⁾ ont montré en calculant ces coefficients pour les atomes neutres que la contribution essentielle provient de la couche $1s^2$. Par conséquent, utiliser ceux-ci pour tous les atomes est une bonne approximation.

Maintenant, si on utilise le modèle de la goutte liquide pour extraire $\frac{\Delta \langle r^4 \rangle_{A_1 A_2}}{\Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2}}$ et

$\frac{\Delta \langle r^6 \rangle_{A_1 A_2}}{\Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2}}$ (avec $R=r_0 A^{1/3}$ et $r_0=1.2 \text{ fm}$) on obtient :

$$v_{A_1 A_2}^{vol} = \frac{2\pi}{3} Z e^2 \Delta |\Psi(0)|^2 \Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2} \left(1 + \frac{C_2}{C_1} \frac{10}{7} R^2 + \frac{C_3}{C_1} \frac{5}{3} R^4 + .. \right)$$

ou encore : $\delta v_{A_1 A_2}^{vol} = F_\lambda \Delta \langle r^2 \rangle_{A_1 A_2} K$.

On pose $F_\lambda = \frac{2\pi}{3} Z e^2 \Delta |\Psi(0)|^2$ facteur électronique de la transition λ

et $K = 1 + \frac{C_2}{C_1} \frac{10}{7} R^2 + \frac{C_3}{C_1} \frac{5}{3} R^4$ ¹⁴⁾.

Grâce à la connaissance des coefficients de Seltzer, nous pouvons tracer K en fonction de Z (voir Fig. 4).

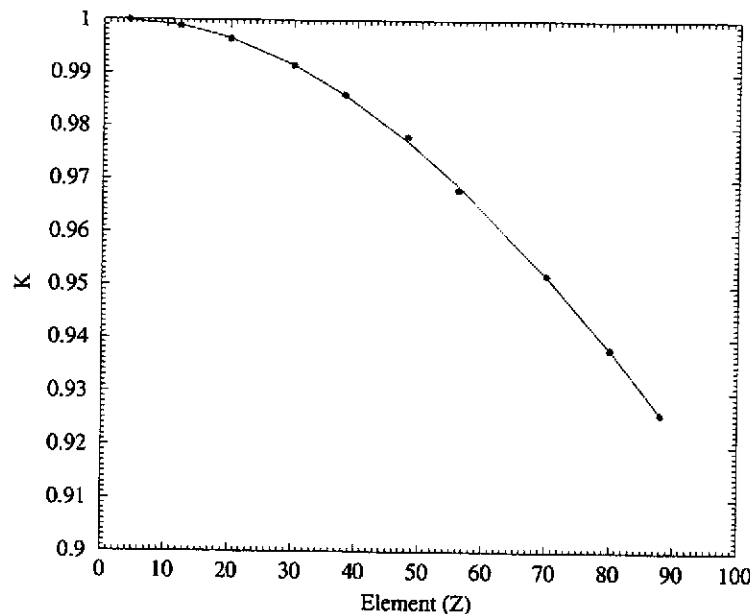


Figure 4 : Variation de K en fonction de l'élément.

Ayant isolé les parties électronique et nucléaire dans le déplacement isotopique de volume, il nous reste à calculer le facteur F_λ pour extraire la variation du rayon carré moyen de charge. F_λ étant un paramètre atomique, il ne sera fonction que de Z et sera donc constant sur une chaîne isotopique.

Calcul du facteur F_λ

La principale difficulté est de calculer la variation de la densité de probabilité de l'électron dans le noyau $\Delta|\psi(0)|^2$ lors de la transition. Nous pouvons le calculer à l'aide de quatre méthodes : 2 méthodes semi-empiriques et 2 méthodes de type Hartree-Fock.

1) Méthodes semi-empiriques:

On suppose tout d'abord que $\Delta|\psi(0)|^2 = \Delta|\psi(0)|^2_{nr} f(Z)$ où les effets relativistes apparaissant dans la fonction d'onde sont introduit *a posteriori* dans un terme de déplacement isotopique $f(Z)$. Ce terme a été calculé pour tous les éléments et entre deux isotopes A_1 et A_2 ^{13), 16)}:

$$f(Z) = (5/2) \bar{A}^{1/3} \cdot \frac{1}{r_0^2} \cdot \frac{1}{A_2 - A_1} \cdot C_{unif}^{A_1, A_2} \text{ avec } r_0 = 1.2 \text{ fm, } \bar{A} = \frac{A_1 + A_2}{2} \text{ et}$$

$$C_{unif}^{A_1, A_2} = (A_2 - A_1) C_{unif}^{A+1, A} + \beta(Z) \cdot \left\{ \left[A_2^{2\gamma/3} - A_1^{2\gamma/3} \right] - (A_2 - A_1) \left[(\bar{A} + 1)^{2\gamma/3} - \bar{A}^{2\gamma/3} \right] \right\}$$

($\gamma = (1 - \alpha^2 Z^2)^{1/2}$ et *unif* pour sphère uniformément chargée).

Le problème est ainsi réduit à la détermination de $\Delta|\Psi(0)|^2_{nr}$ non relativiste que l'on peut relier à la densité de charge de l'électron de valence ns : $\Delta|\Psi(0)|^2_{nr} = \beta |\Psi_{ns}(0)|^2_{nr}$ où $|\Psi_{ns}(0)|^2_{nr}$ est la densité de probabilité de l'électron ns et β un paramètre qui prend en compte l'écrantage de l'électron de valence en question par les autres électrons présents au cœur du noyau. Ce facteur d'écran est très difficile à estimer si on n'effectue pas des calculs multiconfigurationnels. Il est donné pour certains éléments dans la référence ¹³⁾.

$$\text{En résumé : } \Delta|\Psi(0)|^2 = f(Z) \cdot \beta \cdot |\Psi_{ns}(0)|^2_{nr}.$$

Connaissant $f(Z)$ et β , il nous reste à déterminer $|\Psi_{ns}(0)|^2_{nr}$. Il y a encore une fois deux méthodes semi-empiriques pour calculer $|\Psi_{ns}(0)|^2_{nr}$.

a) La formule de Fermi-Goudsmit-Segré¹⁾: cette expression (datant de 1933) suppose que les électrons sont sur des orbites de Bohr et qu'il y a interpénétration de ces orbites.

Dans ce cas, $|\Psi(0)_{ns}|_{nr}^2 = \frac{1}{\pi a_0^3} \frac{Z^3}{n^3}$ devient $|\Psi(0)_{ns}|_{nr}^2 = \frac{1}{\pi a_0^3} \frac{ZZ_a^2}{n^3} \frac{dn_a}{dn}$ où Z_a est la charge effective (1 pour les atomes neutres, 2 pour les ions 1^+ , etc.), n_a est le nombre quantique effectif (nombre quantique principal – une correction de Rydberg) et dn_a/dn est le terme d'interpénétration¹⁾.

b) Par la structure hyperfine (partie magnétique)

On exprime $|\Psi_{ns}(0)|_{nr}^2$ en fonction de la valeur expérimentale de a_{ns} (constante magnétique de structure hyperfine pour une configuration ns pure) et du moment magnétique μ_I du noyau

$$\text{comme : } |\Psi(0)_{ns}|_{nr}^2 = \frac{a_{ns}^{\text{exp}}}{\frac{16\pi}{3} \frac{\mu_0}{4\pi} \mu_B \frac{\mu_I}{I} F(ns_{1/2})(1-\delta)(1-\epsilon)}$$

$F(ns_{1/2})$ est une correction relativiste (tabulée dans ¹⁾), δ la correction de Breit-Rosenthal ¹⁷⁾ et ϵ la correction due à l'effet Bohr-Weisskopf (voir précédemment).

En résumé, pour être applicable, cette méthode semi-empirique suppose que l'état atomique de l'état fondamental possède une configuration ns pure (sans trou d par exemple) ce qui n'est évidemment pas toujours le cas. D'autre part, l'effet d'écran est estimé en général de manière très approximative. Pour déterminer correctement le facteur F_λ de la transition, il faut prendre en compte, dès le départ, les effets relativistes c'est-à-dire *ab initio*.

2) Méthodes Hartree-Fock.

Avec ces méthodes, on calcule directement $|\Psi(0)|^2$ pour chaque état et on fait la différence.

- a) Calculs Dirac-Fock: la fonction d'onde atomique de l'opérateur de Dirac est développée sur une seule configuration de chacun des états. On en déduit ainsi le $|\Psi(0)|^2$ ¹⁴⁾. Ceci est valable pour les configurations pures.
- b) Calculs MCDF (Multi-Configuration-Dirac-Fock)⁵⁾: ici, on tient compte des mélanges entre les configurations d'un état et la fonction d'onde est développée sur

une combinaison linéaire de toutes les configurations possibles. C'est cette méthode qui donne les résultats les plus satisfaisants comme cela est montré sur le tableau 1.

Le facteur F_λ des trois transitions du tableau 1 a été extrait expérimentalement à partir de valeurs connues de $\delta\langle r^2 \rangle$ et de valeurs mesurées de déplacement isotopique (dernière colonne) sur le baryum neutre (Ba I), sur le baryum ionisé une fois (Ba II) et sur le mercure neutre (Hg I). Les deux méthodes semi-empiriques (FGS et HFS) sont en accord entre elles pour Ba II mais reproduisent mal la valeur expérimentale. Le meilleur accord est obtenu pour les calculs MCDF. Cependant on peut remarquer que pour Ba II les calculs DF reproduisent bien la valeur expérimentale : les deux états de la transition sont en effet très purs et n'ont pas besoin d'être développé sur plusieurs configurations contrairement au Ba I et au Hg I ¹⁴⁾.

	FGS	HFS	DF	MCDF	Exp
Ba I	- 3,93		-1,623	-2,996	-2,82
Ba II	- 4,98	- 4,81	-3,76		-3.80
Hg I	- 45		- 64,8	-55,36	-55,65

Tableau 1: Facteurs F_λ calculés avec les quatre méthodes et comparés aux valeurs expérimentales pour quelques transitions.

Nous allons maintenant montrer comment nous pouvons obtenir à la fois le facteur F_λ et l'effet spécifique de masse à partir de données expérimentales : c'est le King-Plot.

3) King-Plot

En résumé, le déplacement isotopique qu'on mesure se décompose en une partie masse et une partie volume. C'est évidemment avec la partie volume qu'on extrait la variation du rayon carré moyen nucléaire $\delta\langle r_c^2 \rangle$.

On a donc : $\delta v_{mes}^{A_1 A_2} = \delta v_{vol}^{A_1 A_2} + \delta v_{masse}^{A_1 A_2} = \delta v_i^{A_1 A_2}$ pour une transition i .

D'où $\delta\nu_i^{A_1A_2} = F_i \delta \langle r^2 \rangle^{A_1A_2} + M_i \frac{A_2 - A_1}{A_1 A_2}$; les deux inconnues à déterminer sont F_i et M_i

(l'effet de masse $M_i = \frac{m_e}{m_p} \nu + k_s$).

Maintenant pour une transition j :

$\delta\nu_j^{A_1A_2} = F_j \delta \langle r^2 \rangle^{A_1A_2} + M_j \frac{A_2 - A_1}{A_1 A_2}$. On peut donc écrire $\delta\nu_i^{A_1A_2}$ en fonction de $\delta\nu_j^{A_1A_2}$:

$$\text{Il vient } \delta\nu_i^{A_1A_2} \frac{F_i}{F_j} = \delta\nu_j^{A_1A_2} + \frac{A_2 - A_1}{A_1 A_2} \left(M_i - M_j \frac{F_i}{F_j} \right).$$

Il faut donc, pour extraire F_i et M_i de la transition i , connaître ces deux paramètres pour une transition j . Si c'est le cas on peut tracer $\delta\nu_i^{A_1A_2}$ en fonction de $\delta\nu_j^{A_1A_2}$ pour plusieurs paires d'isotopes. C'est ce qu'on appelle un King-Plot. Sur la figure 5 est représenté un King-Plot pour des isotopes de platine entre les deux transitions $\lambda=306 \text{ nm}$ et $\lambda=266 \text{ nm}$. Comme F_{266} a été déterminé par des calculs MCDF¹⁸⁾ et M_{266} avait été estimé semi empiriquement¹³⁾, nous avons pu déduire, avec des mesures de déplacement isotopique, F_{306} par la pente de la droite et M_{306} par son ordonnée à l'origine. On déduit donc du King-Plot montré Fig. 5 :

$$\frac{F_{306}}{F_{266}} = 1,12 \pm 0,05 \text{ et } M_{306} - M_{266} = -0,052 \pm 0,08 \text{ GHz.}$$

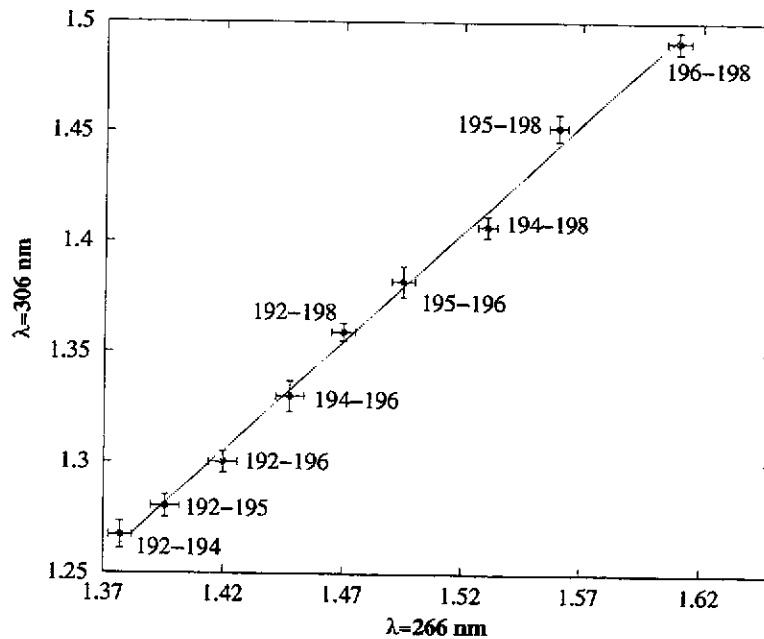


Figure 5 : King-Plot sur le platine entre les transitions $\lambda=306 \text{ nm}$ et $\lambda=266 \text{ nm}$.

En conclusion, la structure hyperfine permet d'extraire les moments magnétique et quadrupolaire spectroscopique Q_s , c'est-à-dire le moment quadrupolaire dans le repère de l'atome. Si on veut définir la forme du noyau, on doit en extraire le moment quadrupolaire intrinsèque Q_0 , c'est-à-dire le moment quadrupolaire dans le repère du noyau. Pour cela on doit faire appel à une loi de changement de repère simple si on suppose que le noyau possède une symétrie axiale. Dans ce cas, $Q_0 = Q_s \frac{(I+1)(2I+3)}{3K^2 - I(I+1)}$ où I est le spin du noyau et

K sa projection sur l'axe de symétrie. Mais quand le noyau possède une forme triaxiale, K n'est plus un bon nombre quantique et on ne peut plus appliquer cette relation.

Par ailleurs, la mesure du déplacement isotopique permet d'obtenir la variation du rayon carré moyen de charge. On peut par la suite décomposer $\delta\langle r_c^2 \rangle$ en une partie sphérique $\delta\langle r_c^2 \rangle_{sph}$ et une partie déformée $\delta\langle r_c^2 \rangle_{def}$. La partie sphérique est facilement calculable par le modèle de la gouttelette liquide ¹⁹⁾ et là encore, si on suppose une symétrie axiale du noyau, on peut extraire la déformation quadrupolaire β en fonction $\delta\langle r_c^2 \rangle_{def}$ (les termes octupolaires, hexadécapolaires, etc. sont négligés). Avec cette hypothèse, on a deux sources pour obtenir la déformation du noyau : par la structure hyperfine (B donne Q_s) et par le déplacement isotopique ($\Delta\nu$ donne β). Ceci constitue donc un bon test des modèles nucléaires.

Maintenant, pour regarder des effets plus fins comme on le verra plus tard, il faut monter de quelques ordres de grandeur en précision. On doit alors regarder à l'intérieur des multiplets hyperfins (et non plus entre ceux-ci). Pour cela, on les observe avec une loupe en appliquant un champ magnétique extérieur.

IV. Application d'un champ extérieur.

Le fait d'appliquer un champ magnétique sur l'atome provoque la levée de dégénérescence des niveaux atomiques F en sous-niveaux m_F . On peut appliquer trois types de champs : un champ magnétique faible (quelques Gauss) : on obtient l'effet Zeeman, un

champ fort (50.000 à 150.000 Gauss) : on obtient l'effet Paschen-Back, et un champ intermédiaire.

A. L'effet Zeeman

La partie magnétique de l'hamiltonien hyperfin s'écrivant :

$W_{MHF} = \mu_I H(0) \frac{F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)}{2IJ}$, on lui rajoute, grâce à l'application d'un

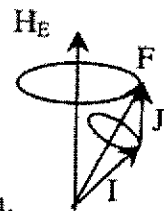
champ extérieur H_E , un terme qui interagira avec le moment magnétique total de l'atome μ_F :

$\Delta W_{F,H} = -\mu_F H_E \cos(\mu_F, H_0) = \mu_F H_E \cos(F, H_E)$, avec $\mu_F = \mu_J \cos(J, F) - \mu_I \cos(I, F)$.

Le champ magnétique découple le spin de l'atome en créant de nouveaux niveaux m_F .

On peut donc écrire $\Delta W_{F,H}$ comme $\Delta W_{F,H} = \mu_B H_E m_F g_F$ ¹⁾, où

$g_F = g_J \frac{F(F+1) + J(J+1) - I(I+1)}{2F(F+1)} - g_I \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)}$ est



le facteur gyromagnétique de l'atome, g_J celui de l'électron et g_I celui du noyau.

On obtient ainsi une levée de dégénérescence sur chaque niveau F en $2F+1$ niveaux Zeeman (voir Fig. 6).

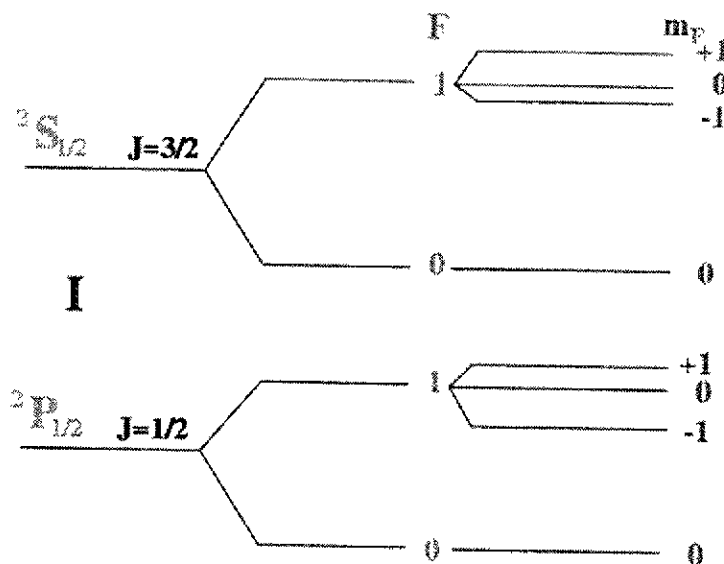


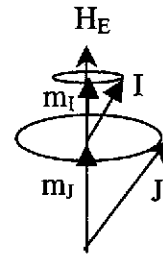
Figure 6 : Niveaux Zeeman de deux niveaux de spin $J=1/2$.

Les niveaux Zeeman sont séparés d'environ 50 MHz ce qui est très petit devant l'énergie de séparation des niveaux hyperfins qui est en moyenne de 5 GHz.

Pour que $\Delta W_{F,H}$ soit considéré comme une perturbation devant W_{MFH} , il faut que $\mu_B H_E \ll \mu_I H(0)$, donc que $H_E \ll \frac{\mu_I H(0)}{\mu_B}$ ce qui fait environ $10^{-3} H(0)$. Comme $H(0)$ est de l'ordre de 10^6 G, H_E ne peut pas excéder 100 G pour obtenir l'effet Zeeman en champ faible.

B. L'effet Paschen-Back

Il s'agit de l'effet Zeeman en champ fort. Ici, le champ H_E est tellement important qu'il provoque le découplage de I et de J en deux types de sous-niveau m_I et m_J (voir figure).



On peut écrire l'hamiltonien Paschen-Back comme ¹⁾:

$$\Delta W_{PB} = \Delta W_{J,H} + \Delta W_{I,H} + \Delta W_{I,J} \text{ où } \Delta W_{J,H} = -\mu_B H_E J g_J \cos(J, H_0) = \mu_B H_E m_J g_J,$$

$$\Delta W_{I,H} = -\mu_B H_E I g_I \cos(I, H_0) = \mu_B H_E m_I g_I \text{ et } \Delta W_{I,J} = A I J \cos(I, J) = A m_I m_J.$$

$$\text{D'où } \Delta W_{PB} = \mu_B H_E m_J g_J - \mu_B H_E m_I g_I + A m_I m_J.$$

L'effet Paschen-Back est représenté schématiquement sur la figure 7.

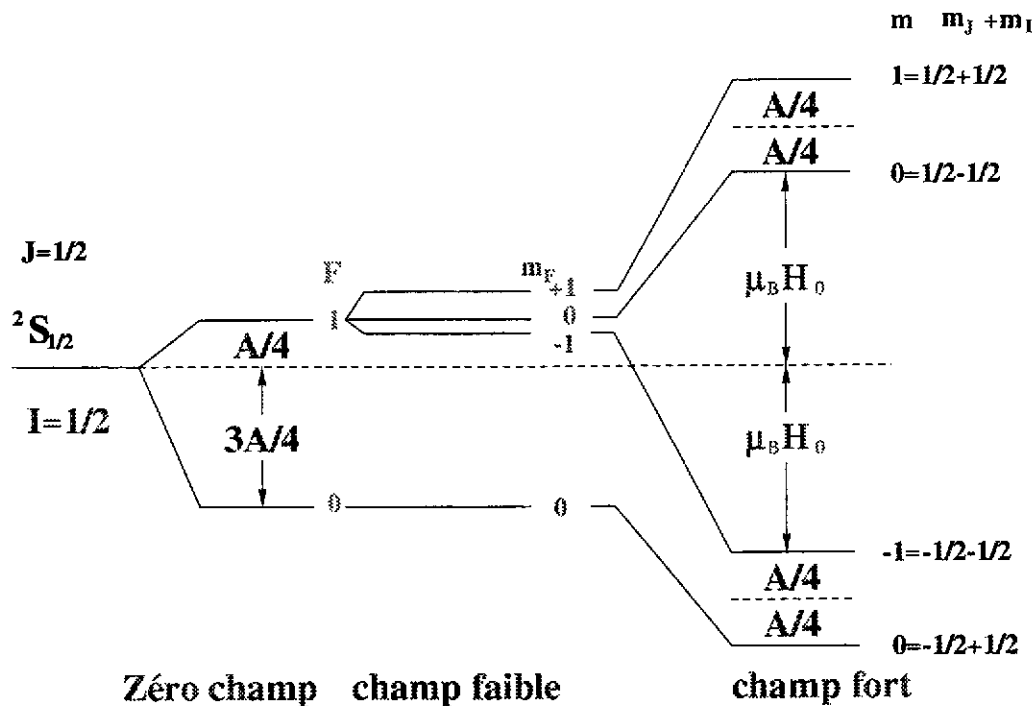


Figure 7 : Effets de l'application de 2 types de champs sur un niveau $I=J=1/2$

L'énergie de séparation des niveaux Paschen-Back étant très grande devant l'énergie de séparation hyperfine, $\Delta W_{PB} \gg W_{MHF}$, on doit avoir $H_E \gg \frac{\mu_I H(0)}{\mu_B}$. Donc $H_E \gg 10^{-3} H(0)$.

H_E doit atteindre au moins 10.000 G.

C. Effet en champ intermédiaire.

Dans ce cas, la levée de dégénérescence Zeeman est du même ordre de grandeur que levée de dégénérescence hyperfine. On peut traiter relativement facilement le cas où $J=1/2$.

L'énergie totale d'un niveau (comprenant l'énergie hyperfine) peut s'écrire comme ²⁰⁾ :

$$W_H = -\frac{A}{4} - m g_I \mu_B H_E \pm \frac{1}{2} \sqrt{A^2 \left(I + \frac{1}{2}\right)^2 + 2Am(g_J - g_I)\mu_B H_E + (g_J - g_I)^2 \mu_B^2 H_E^2}, \text{ le}$$

signe + étant employé pour les niveaux $F=I+1/2$ et le signe - pour $F=I-1/2$. A est la constante magnétique de structure hyperfine et l'écart hyperfin $\delta W_0 = \frac{A}{2}(2I+1)$.

On pose: $x = \frac{g_J - g_I}{\delta W_0} \mu_B H_E$ et avec $I-1/2 < m < I+1/2$, on obtient la formule de Breit-Rabi ²⁰⁾:

$$W_H = -\frac{\delta W_0}{2(2I+1)} - m g_I \mu_B H_E \pm \frac{\delta W_0}{2} \sqrt{1 + \frac{4m}{2I+1} x + x^2}. \text{ La figure 8 représente l'évolution en}$$

énergie des niveaux Zeeman en fonction du champ extérieur appliqué.

Si H_E est faible, x^2 est petit devant 1.

$$\text{On a alors : } W_H \cong -\frac{\delta W_0}{2(2I+1)} - m g_I \mu_B H_E \pm \frac{\delta W_0}{2} \left(1 + \frac{1}{2} \frac{4m}{2I+1} \frac{g_J - g_I}{\delta W_0} \mu_B H_E \right),$$

d'où $W_H \cong \frac{A}{4} (-1 \pm (2I+1)) + \frac{m \mu_B H_E}{2I+1} (g_I (2I+1 \mp 1) \pm g_J)$ et on retrouve l'expression de l'énergie totale des niveaux en champ faible.

Si maintenant H_E est fort, x^2 est très grand devant 1.

$$\text{On a donc : } W_H \cong -\frac{\delta W_0}{2(2I+1)} - m g_I \mu_B H_E \pm \frac{\delta W_0}{2} \left(\frac{g_J - g_I}{\delta W_0} \mu_B H_E \right)$$

D'où $W_H \cong \frac{Am_I}{2} \pm \frac{1}{2}(g_J \mu_B H_E) - m g_I \mu_B H_E$ et on retrouve l'expression des énergies dans le cas de l'effet Paschen-Back.

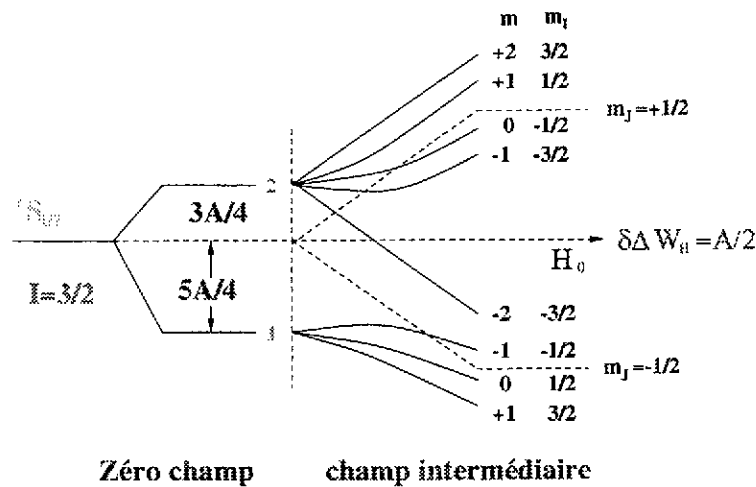


Figure 8: Evolution des niveaux Zeeman en fonction du champ magnétique pour $J=1/2$.

D. Les transitions à l'intérieur du multiplet

En champ faible, les transitions dipolaires magnétiques permises sont pour :

- $\Delta m_F=0$ (seulement pour $\Delta F=\pm 1$), composantes σ polarisées perpendiculairement au champ.
- $\Delta m_F=\pm 1$ (pour $\Delta F=0, \pm 1$), composantes π polarisées parallèlement au champ.

En champ fort, $\Delta m_J=0$, $\Delta m_I=\pm 1$ et $\Delta m_I=0$, $\Delta m_J=\pm 1$ sont permis.

Pour mesurer l'anomalie hyperfine, on utilisera des transitions en champ intermédiaire pour la mesure du facteur gyromagnétique et des transitions en champ faible pour celle de la constante magnétique de structure hyperfine A à très haute précision.

En résumé, la spectroscopie atomique peut être effectuée au moyen de deux méthodes en fonction des effets recherchés. Les lasers sont utilisés entre plusieurs multiplets hyperfins pour mesurer des grandeurs comme les moments nucléaires et la variation du rayon carré moyen de charge. Pour avoir accès à des précisions de 10^{-9} afin de quantifier, par exemple, l'anomalie hyperfine, on utilise la radiofréquence de manière à étudier des transitions à l'intérieur d'un multiplet hyperfin.

METHODES EXPERIMENTALES DE SPECTROSCOPIE LASER

En spectroscopie laser, le but d'une expérience est de mesurer le spectre hyperfin de l'atome étudié. La méthode la plus largement appliquée pour une telle étude est la spectroscopie colinéaire sur un faisceau atomique produit par un séparateur d'isotope. L'avantage d'une telle méthode est la bonne efficacité obtenue (environ 10^{-5}) et la haute résolution qu'elle procure (de 20 à 60 MHz) principalement grâce à la faible dispersion en vitesse des atomes dans la direction du faisceau. Cependant, cette méthode ne peut pas s'appliquer aux éléments qui ne sont pas produits par les séparateurs d'isotopes. Par exemple, les éléments réfractaires ne peuvent être obtenus dans la majeure partie des cas, que par décroissance radioactive d'isotopes produits par séparateur. Pour cette raison, il existe des ensembles expérimentaux qui utilisent la décroissance des isotopes radioactifs pour produire une source d'atomes réfractaires grâce à la désorption laser. Les atomes sont alors étudiés et ionisés par le processus RIS (Resonance Ionization Spectroscopy). L'efficacité d'une telle méthode est relativement bonne (10^{-5}) mais la résolution atteint 250 MHz à cause de la grande dispersion en vitesse des atomes dans le nuage d'atomes désorbés.

Dans ce chapitre, nous allons décrire les deux méthodes qui sont le plus souvent employées en les illustrant par différents exemples : la spectroscopie colinéaire et les expériences de type RIS comme le système COMPLIS.

I. La spectroscopie colinéaire

A. Principe de la spectroscopie colinéaire

La spectroscopie colinéaire consiste en une excitation laser sur faisceau atomique. Généralement, on utilise un séparateur d'isotopes qui produit des ions radioactifs mono chargés séparés en masse. Ces ions sont accélérés sous une tension de quelques dizaines de kilovolts et sont neutralisés par une cellule à échange de charge remplie d'un gaz (sodium, cadmium...)

judicieusement choisi. On choisit le gaz en fonction de son potentiel d'ionisation. En effet, les ions traversant le gaz capturent ses électrons périphériques. Celui-ci, en s'ionisant, transfère aux atomes ainsi formés une énergie égale à son potentiel d'ionisation. Les atomes sont alors en majeure partie dans un état métastable situé à la valeur du potentiel d'ionisation du gaz. Cet état est alors excité par le faisceau d'un laser continu pour atteindre un autre niveau métastable. Les atomes se dés excitent en émettant des photons de fluorescence suivant plusieurs chemins. Le signal est collecté sur un photomultiplicateur grâce à un miroir ellipsoïdal. Avec des filtres optiques, on ne détecte que les photons correspondant au chemin de dés excitation choisi. Les longueurs d'onde d'excitation et de dés excitation doivent être très différentes car sans quoi le bruit de fond apporté par la lumière laser d'excitation ne permet pas de faire de mesure. On effectue un balayage en fréquence du laser et à chaque fois que la longueur d'onde du laser correspond à une transition hyperfine, les atomes excités par absorption se dés excitent en émettant un nombre de photons directement proportionnel à l'intensité de la transition hyperfine. Un schéma de principe est représenté sur la figure 9.

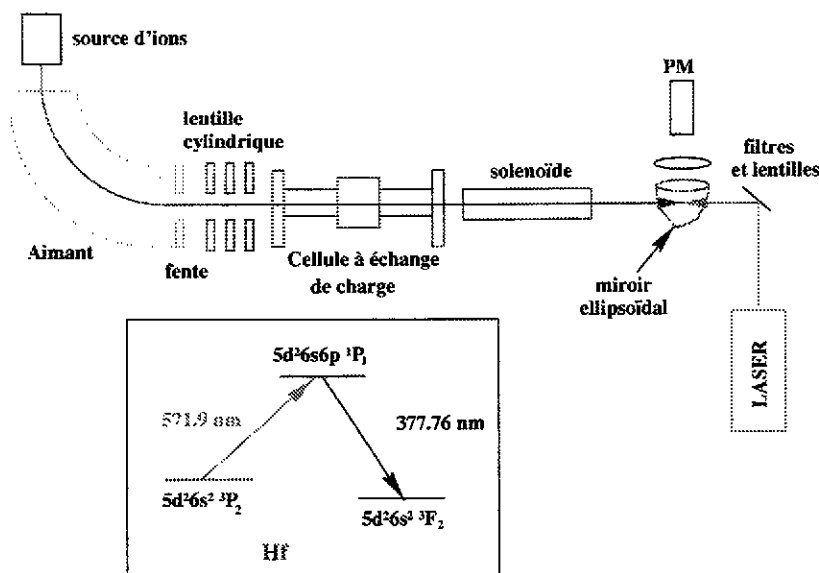


Figure 9: Schéma de principe d'une expérience de spectroscopie colinéaire sur l'hafnium.

B. Les différentes étapes de la spectroscopie colinéaire

1) la neutralisation

La figure 10 représente un schéma de neutralisation du mercure après passage dans une cellule à échange de charge remplie avec du sodium sous forme gazeuse; son potentiel

d'ionisation se situant à 5,7 V, tous les états électroniques du mercure situés au-dessus de cette valeur seront peuplés. Le laser est alors envoyé dans le faisceau d'atomes afin d'exciter par exemple l'état $6s6p\ ^3P_2$ vers l'état $6s7s\ ^3S_1$ si celui-ci est choisi comme chemin d'excitation.

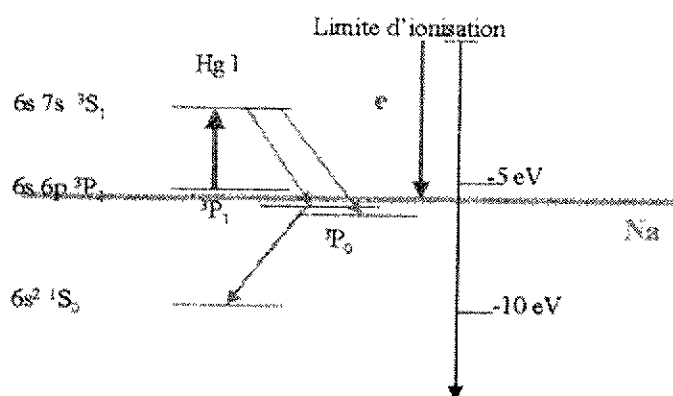
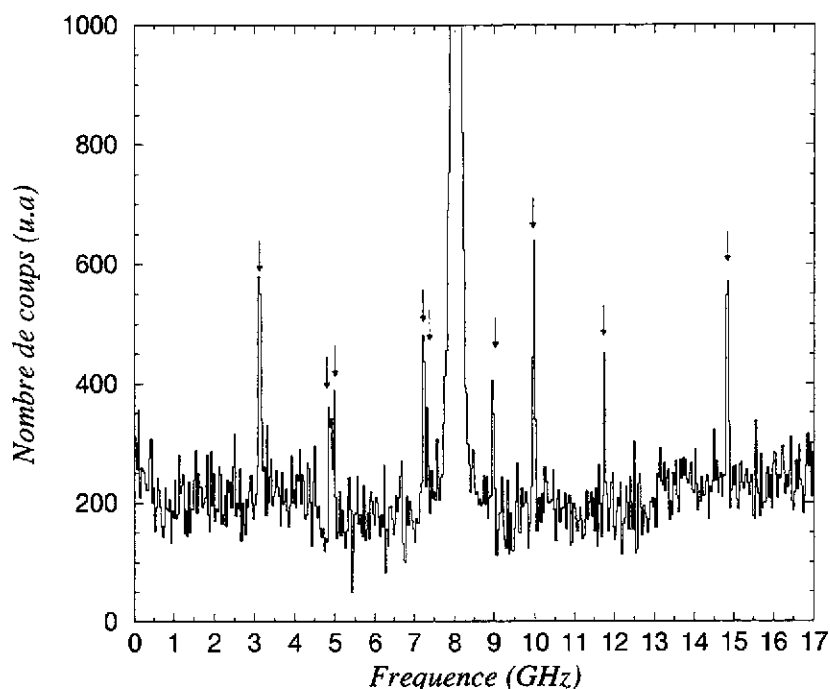


Figure 10 : Pompage optique sur le mercure après neutralisation par le sodium.

2) Le balayage en fréquence

Pour s'affranchir des molécules parasites, on laisse les atomes dériver sur une trentaine de centimètres avant d'atteindre le miroir ellipsoïdal qui renverra tous les photons vers le détecteur. Le laser doit exciter les atomes à l'intérieur de ce miroir uniquement. On place donc un solénoïde autour du tube à dérive qui éclatera les niveaux hyperfins par effet Zeeman pour les rendre invisibles par le laser entre la cellule à échange de charge et le détecteur (voir Fig. 9). A l'intérieur du miroir, le champ magnétique du solénoïde n'agira plus sur les atomes et les niveaux hyperfins pourront être excités normalement par le laser. Le balayage en fréquence est effectué non pas avec le laser mais en agissant sur la vitesse des ions. On utilise l'effet Doppler pour faire varier la fréquence que verront les atomes en plaçant une lentille cylindrique à l'entrée de la cellule à échange de charge qui pourra ralentir ou accélérer les ions. Le balayage en tension est en effet beaucoup plus stable et surtout plus rapide qu'un balayage par le laser (quelques millisecondes au lieu de quelques minutes). On peut ainsi accumuler beaucoup de spectres hyperfins en un temps relativement court. La résolution est due à la dispersion en vitesse des ions imposée par la stabilité de la tension d'accélération. En général, une variation de quelques volts sur 60 kV provoque une dispersion en fréquence d'environ 50 MHz pour un spectre de quelques GHz. Un spectre hyperfin d'un isomère de l'hafnium $^{178}\text{Hf}^{\text{m}2}$ effectué dans ces conditions est présenté figure 11 à titre d'exemple. Les

valeurs des moments nucléaires et de la variation du rayon de charge entre l'isomère et le noyau dans son état fondamental extraits du spectre sont indiqués sous cette figure²¹⁾.



$$A-B-\Delta\nu$$

$$\mu = A/\langle H(0) \rangle = 8.16 (4) \text{ nm}$$

$$Q_s = B/\langle \Phi(0) \rangle = 6.00 (7) \text{ b}$$

$$\delta \langle r_c^2 \rangle_{178,178m2} = \Delta\nu/F_\lambda = -0.059 (9) \text{ fm}^2$$

Figure 11 : Spectre hyperfin de l'hafnium 178 (isomère + état fondamental). Le pic central représente l'état fondamental et les 9 raies marquées par des flèches l'état isomérique 16^+ .

3) Réduction du bruit de fond

L'interaction du faisceau avec le miroir ellipsoïdal provoque souvent un bruit de fond qui peut noyer le spectre hyperfin. Pour pallier cet inconvénient (dans le cas d'un signal très faible) on utilise la méthode des coïncidences photon-ion. On effectue alors la spectroscopie colinéaire non pas sur des atomes, mais sur des ions mono chargés. On place tout simplement à la sortie du miroir ellipsoïdal un déflecteur électrostatique suivi d'un détecteur d'ions. On comptera en même temps les photons de désexcitation de l'état atomique choisi et les ions de

l'élément étudié. On peut ainsi effectuer des mesures avec 100 ions par seconde arrivant sur le détecteur (voir ²²).

En conclusion la méthode de la spectroscopie colinéaire est très puissante compte tenu de l'excellente résolution qu'elle fournit mais elle est limitée à l'étude des éléments produits par des séparateurs d'isotopes. Les autres éléments et particulièrement les éléments réfractaires, sont très difficiles à ioniser. De ce fait, la méthode RIS (Resonance Ionization Spectroscopy) est la plus couramment utilisée car elle permet d'étudier les descendants radioactifs des éléments fournis par les séparateurs.

II. La méthode R.I.S.

A. Principe de la spectroscopie par ionisation résonante

La spectroscopie par ionisation résonante (RIS) est une technique d'une grande sélectivité et d'une grande sensibilité qui permet d'exciter un atome en mesurant sa structure hyperfine puis de l'ioniser pour le détecter ²³. A cause de la forte puissance que requiert l'étape d'ionisation, on utilise des lasers pulsés à impulsions très courtes (10 ns). Par cette méthode, l'atome d'une famille d'isotopes est excité par une ou plusieurs transitions résonantes vers un état proche du continuum d'ionisation à partir duquel il pourra être ionisé par absorption d'un seul photon provenant d'un laser de haute puissance.

La sélectivité pour détecter un atome d'un Z bien défini est très élevée (jusqu'à 10^{15} et plus) car les schémas d'ionisation résonante sont très différents d'un élément à un autre. De plus, la multiplication des étapes d'excitation améliore la sélectivité.

L'efficacité d'ionisation dépend surtout de la puissance du laser produisant l'étape d'ionisation (les étapes d'excitation étant rapidement saturées). Pour une section efficace d'ionisation variant de 10^{-17} à 10^{-19} cm², la densité de puissance nécessaire est de 10^6 à 10^8 W/cm² ²³. Une telle puissance peut être atteinte uniquement avec un laser pulsé d'énergie variant entre 10 mJ et 1 J.

B. L'exemple de l'expérience COMPLIS (Collaboration for spectroscopy Measurements using a Pulsed Laser Ion Source)

Avec cette expérience, les atomes sont produits sous forme de jet par un laser de désorption. Le principe est le suivant : les ions radioactifs sont produits et accélérés sous 60 kV par le séparateur ISOLDE en ligne avec le BOOSTER du synchrotron à protons du CERN. Ils sont séparés en masse et les isobares rentrent dans la ligne de faisceau de COMPLIS. Ils sont ensuite déviés par un aimant et ralentis par une lentille électrostatique portée à un potentiel de 59 kV afin de les déposer sous 1 kV dans les premières couches atomiques d'un support de graphite. On attend alors la décroissance radioactive de l'élément implanté en l'élément fils ou petit-fils que l'on veut étudier et lorsque le nombre d'atomes est estimé suffisant, ceux-ci sont désorbés par un laser pulsé Nd:YAG (laser solide de Grenat d'Aluminate d'Yttrium dopé au Néodyme) de chauffage sous forme de nuage atomique. Une dizaine de microseconde plus tard les atomes sont ionisés par le processus RIS en 2 ou 3 étapes atomiques à l'aide de 2 ou 3 lasers à colorant pulsés. Les ions ainsi formés peuvent être accélérés par la lentille électrostatique sous 59 kV. Ils traversent l'aimant en sens inverse et sont détectés par des galettes de micro-canaux avec identification en masse par temps de vol (voir Fig. 12). Grâce à un laser pulsé de haute résolution ²⁴⁾, on effectue un balayage en fréquence sur la première étape d'excitation. On balaye ainsi pas à pas toute la structure hyperfine de l'atome, et à chaque fois que la fréquence du laser correspond à une transition hyperfine, l'atome est excité et peut être ionisé par les autres faisceaux laser qui ont une chacun une longueur d'onde fixe. Le nombre d'ions détectés par les galettes de micro-canaux est directement proportionnel à l'intensité de la transition hyperfine.

Cependant, les conditions de désorption et le schéma d'excitation-ionisation doivent être déterminés pour chaque expérience car elles varient selon l'élément. On utilise pour cela l'injecteur (petit séparateur en masse d'ions stables) indiqué sur la figure 12. A titre d'exemple, l'or absorbe surtout les longueurs d'onde vertes (couleur du faisceau YAG) contrairement au platine qui réfléchit toutes les couleurs. De plus, comme ces deux éléments ne sont pas réfractaires de la même façon, les supports d'implantation seront donc différents. Pour chaque élément, des tests sont effectués avec l'injecteur sur plusieurs supports de graphite à différentes puissances du laser de désorption. De même, on définit également par des tests le chemin d'excitation-ionisation le plus efficace pour l'élément à étudier. De cette façon, on

mesure l'efficacité totale du système et la résolution en fréquence des spectres hyperfins. En général, l'efficacité est de l'ordre de 10^{-5} et la résolution de 250 MHz.

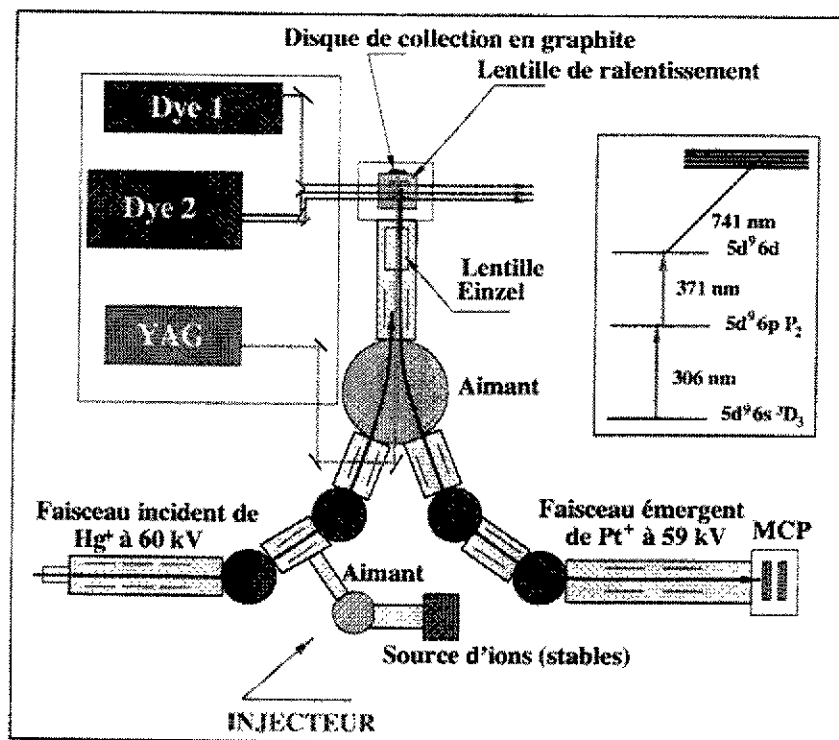


Figure 12 : Schéma de principe de l'expérience COMPLIS. L'encadré montre le schéma d'excitation-ionisation utilisé pour le platine.

On peut, grâce à ce système expérimental, étudier des noyaux très loin de la stabilité. Nous avons par exemple mesuré la variation du rayon carré moyen de charge des noyaux de platine jusqu'à la masse 178²⁵⁾ (le plus lourd des isotopes stables est ¹⁹⁸Pt soit 20 masses au dessus). La figure 13 représente un spectre typique enregistré pour ¹⁸³Pt qui possède un isomère de longue durée de vie (43 s). Les 2 raies les plus intenses sont facilement identifiables comme étant celles de l'état fondamental car son spin est 1/2. Avec son spin 7/2, l'état isomérique répartit son intensité parmi 10 principales raies.

III. Conclusion

Nous avons montré que la spectroscopie laser est un outil spécifique pour déterminer des constantes fondamentales en physique nucléaire. Cette méthode originale permet de

mesurer les moments nucléaires des noyaux ainsi que leur variation du rayon de charge indépendamment des modèles nucléaires. Elle est donc un complément indispensable à la spectroscopie nucléaire puisqu'elle aborde le noyau de l'extérieur.

Nous avons exposé deux techniques principalement utilisées en spectroscopie laser : la spectroscopie colinéaire directement sur un faisceau produit par un séparateur d'isotopes et la spectroscopie par ionisation résonante couplée à la désorption d'atomes qui permet l'étude des noyaux réfractaires non produits par un séparateur d'isotopes.

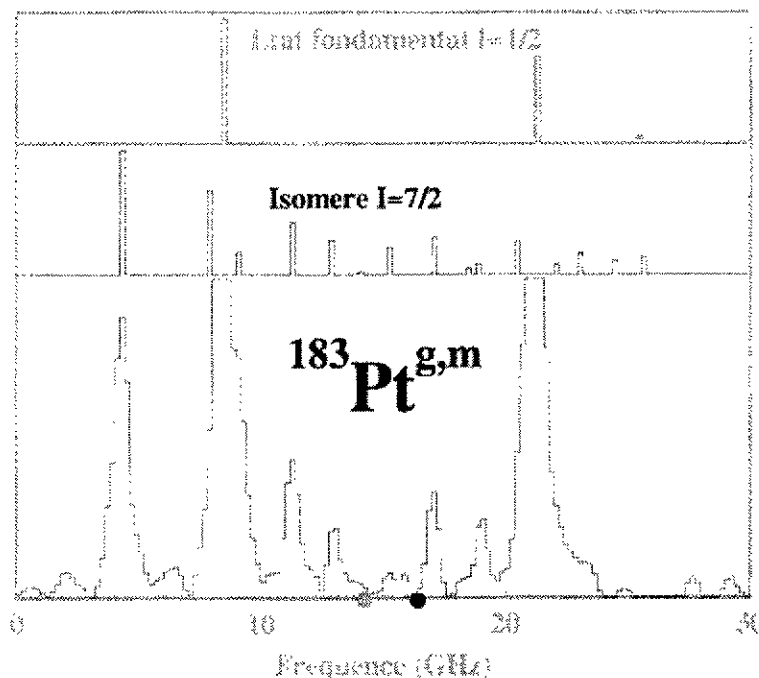


Figure 13 : Spectre hyperfin de $^{183}\text{Pt}^{g,m}$. L'échelle verticale a été volontairement saturée pour faire apparaître les raies de l'isomère. Les 2 spectres théoriques au-dessus du spectre expérimental ont été reconstitués à partir des constantes de structure hyperfine de l'état fondamental et isomérique et à partir du déplacement isomérique extraits du spectre expérimental. Les deux points sur le spectre expérimental correspondent aux deux centres de gravités des deux structures hyperfines.

Pour illustrer ces méthodes nous avons choisi de décrire des noyaux se situant dans la région de transition située autour de $A=190$. C'est en effet une région particulièrement riche dans la mesure où de nombreuses instabilités de formes ont été mises en évidence que se soit par spectroscopie nucléaire ou par spectroscopie laser. La figure 14 illustre cette région de masse en terme de variation de rayon carré moyen de charge. L'étude des noyaux de mercure

a été effectuée par spectroscopie colinéaire (puisque le séparateur ISOLDE fournit des faisceaux de mercure) et celle des autres éléments par la méthode RIS. Les nombreuses instabilités de forme apparaissant à la traversée du milieu de couche $N=104$ montrent la puissance de la spectroscopie laser qui peut mettre ainsi en évidence des phénomènes inattendus de ce type.

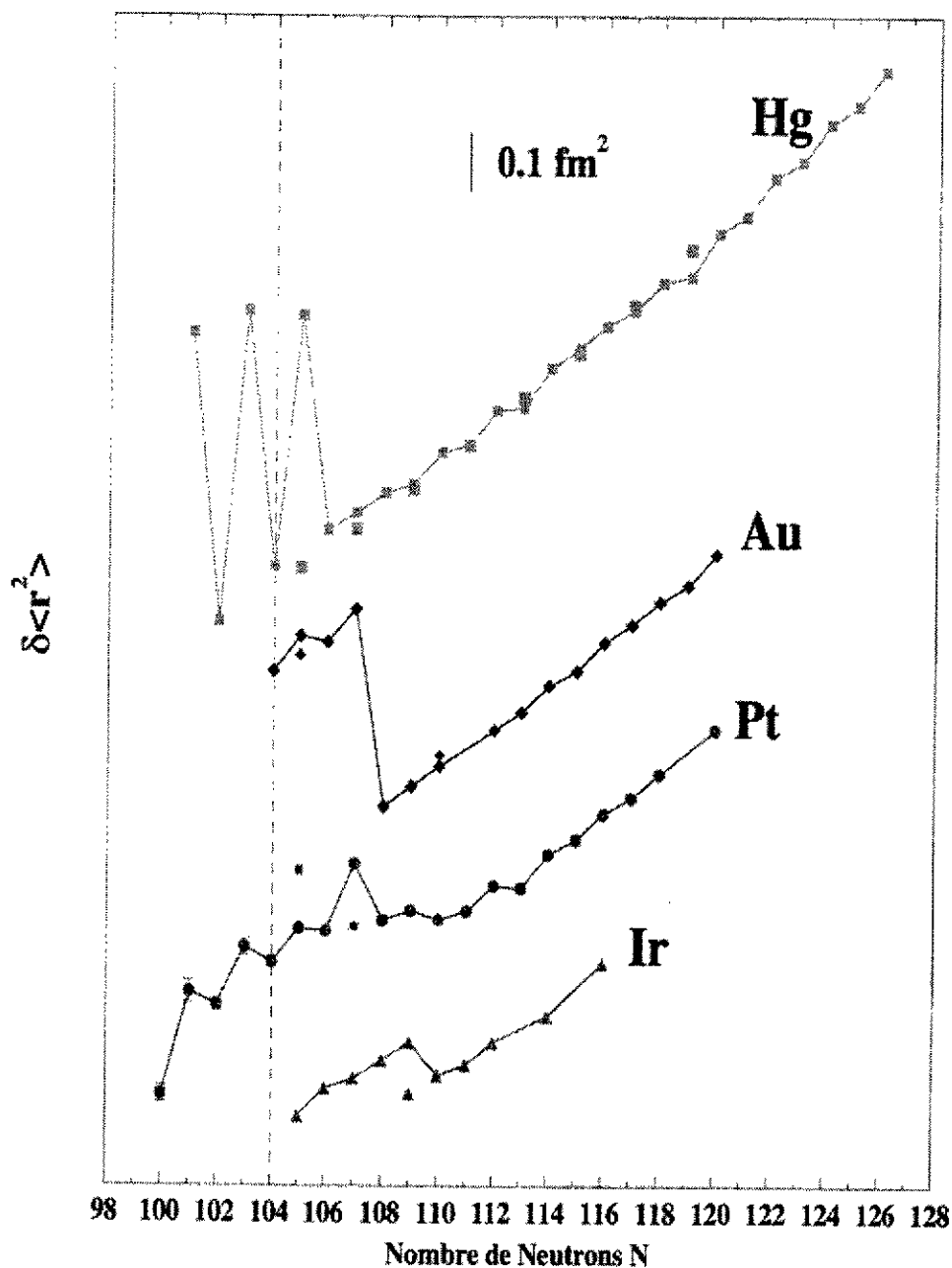


Figure 14 : Variation du rayon carré moyen de charge en fonction du nombre de neutrons des éléments de la région de transition autour de $A=190$. Pour tous, l'approche ou la traversée du milieu de couche neutron $N=104$ est accompagnée par de nombreuses instabilités de formes.

SPECTROSCOPIE RADIOFRÉQUENCE

COUPLÉE AU LASER

L'étude des noyaux légers et des isotopes proches des couches magiques ne peut pas s'effectuer à l'aide de la spectroscopie laser seule car la précision obtenue avec celle-ci dépasse rarement 1 %. Ceci est dû au fait que les moments quadrupolaires sont de l'ordre du millibarn. Par ailleurs, l'étude de la structure hyperfine par spectroscopie laser ne permet pas d'atteindre le 3^{ème} et 4^{ème} ordre pour mettre en évidence des effets octupolaires ou même hexadécapolaires. De plus, si on s'intéresse aux mesures d'anomalie hyperfine, il est indispensable d'avoir la valeur du moment magnétique avec une très grande précision.

Dans cette partie nous allons décrire le principe de trois types d'expériences : les expériences β -NMR avec polarisation par laser dont la spécificité est de déterminer des moments quadrupolaires d'une dizaine de millibarn; la méthode ABMR qui mesure la constante magnétique de structure hyperfine et le facteur gyromagnétique nucléaire pour extraire une valeur précise de l'anomalie hyperfine; les expériences avec les trappes qui permettent d'obtenir les valeurs des constantes de structure hyperfine avec une précision telle qu'on peut avoir accès aux paramètres octupolaires et hexadécapolaires.

Dans chacun des trois cas, on mesurera des transitions qui relient des états d'un même multiplet hyperfin. Pour cela, l'application d'un champ magnétique extérieur est nécessaire de manière à observer ces états avec une sorte de loupe. Les transitions mises en jeu se situent dans le domaine de la radiofréquence aux alentours du GHz.

I. La méthode β -NMR

Il s'agit de mesurer l'asymétrie de la décroissance radioactive β en fonction de la valeur des transitions radiofréquences σ ($\Delta m = \pm 1$) grâce à l'application d'un champ magnétique extérieur. Cette méthode est très largement décrite dans le cours de Gerda Neyens; aussi montrerons-nous simplement l'intérêt d'ajouter un faisceau laser à l'expérience.

Nous décrivons un tel principe en nous appuyant sur l'exemple d'une expérience installée au CERN en ligne avec ISOLDE qui a permis notamment d'obtenir les moments quadrupolaires des noyaux de lithium riches en neutrons (noyaux à halos).

Le système expérimental est représenté schématiquement sur la figure 15 ²⁶⁾.

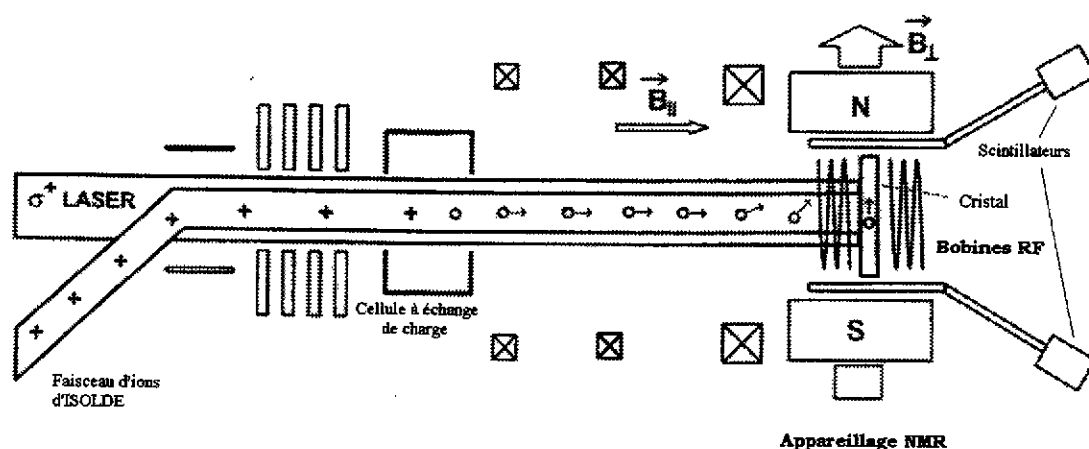


Figure 15 : Système expérimental β -NMR avec pompage optique par laser ²⁶⁾.

Le principe est le suivant : les ions mono chargés produits par le séparateur ISOLDE sont guidés vers l'installation NMR. Ceux-ci sont neutralisés dans un état atomique bien défini grâce à une cellule à échange de charge (exactement comme en spectroscopie laser colinéaire). Un faisceau laser est envoyé colinéairement au faisceau d'atomes pour effectuer un pompage optique (voir Fig. 16).

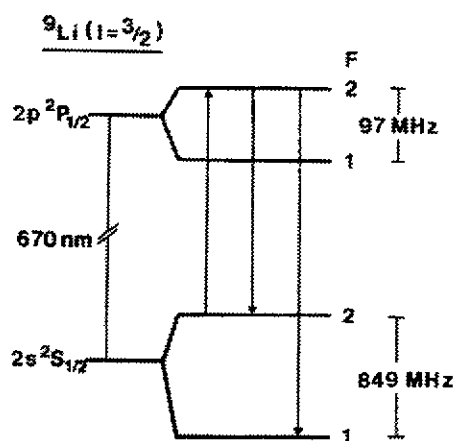


Figure 16 : pompage optique sur le lithium 9.

Par exemple, dans le cas du lithium, tous les atomes sont sur le niveau $F=1$. La traversée du faisceau dans un champ magnétique intermédiaire les polarise dans un état $m_J = -1/2$ (voir Fig. 8). Les atomes ainsi polarisés suivent leur trajet jusqu'à l'installation NMR. Pendant ce temps, la polarisation des atomes est transférée au noyau grâce à l'interaction hyperfine. Ceux-ci sont finalement implantés dans un cristal qui contient entre autres le matériau à implanter. On effectue alors un balayage radiofréquence autour de la fréquence de Larmor et on compte les électrons de décroissance radioactive à 0° et 180° ceci pour chaque pas de radiofréquence. On obtient un spectre d'asymétrie dont on peut extraire la valeur absolue du moment magnétique et la valeur du moment quadropolaire si on identifie les transitions (voir Fig. 17). En effet, la différence d'énergie entre deux niveaux m et $m-1$ peut s'écrire en fonction des moments magnétiques et quadropolaires comme ²⁷⁾:

$$\Delta E = E_m - E_{m-1} = g_I \mu_N H_0 - \frac{3e^2 V_{zz} Q_s}{4I(2I-1)} \times (3 \cos^2 \theta - 1) \left(m + \frac{1}{2} \right), \quad (1)$$

où H_0 est le champ extérieur, V_{zz} le champ cristallin, θ l'angle d'asymétrie et I le spin du noyau. On appellera la fréquence de Larmor $\nu_L = |g_I| \mu_N H_0 / h$ et la fréquence quadropolaire $\nu_Q = e^2 V_{zz} Q_s / h$.

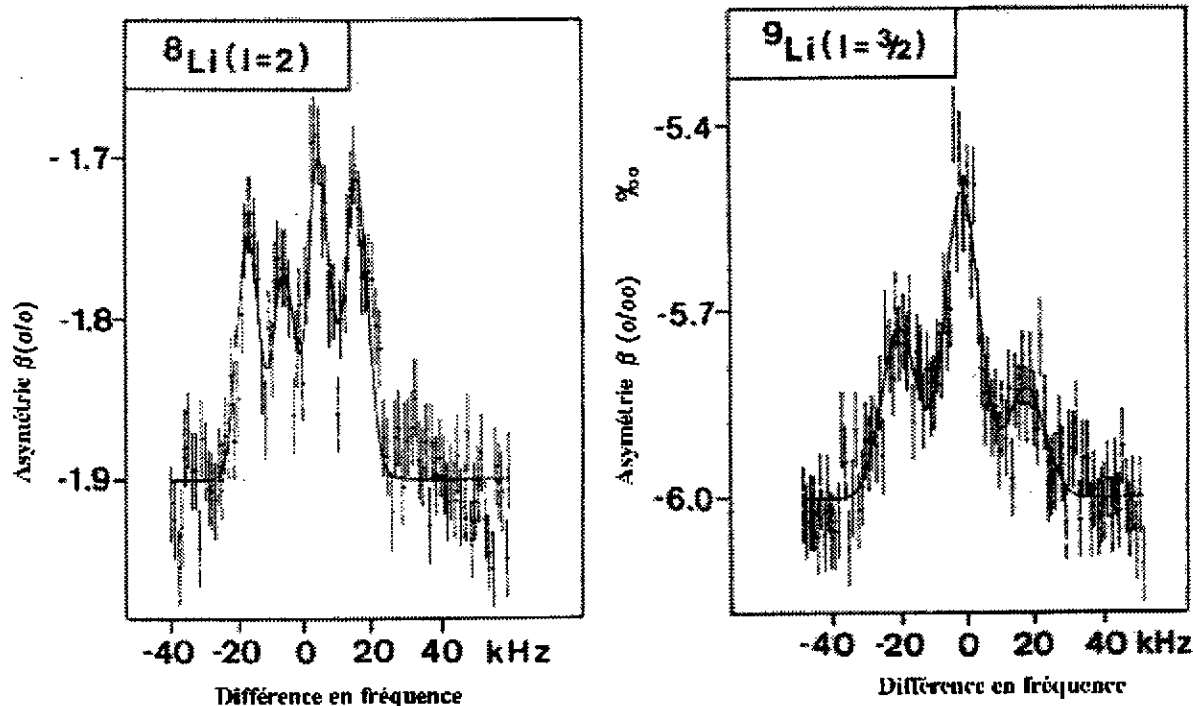


Figure 17 : Spectres β -NMR des lithiums 8 et 9 ²⁸⁾.

1) Moments magnétiques

Grâce à la relation (1) nous pouvons déduire que la fréquence de Larmor (entre $m = -1/2$ et $m = 1/2$) est la troisième raie en partant de la gauche pour le lithium 8 et correspond à la fréquence centrale pour le lithium 9 (voir Fig. 17). Avec cette mesure et grâce à la connaissance antérieure de $\mu_1(^8\text{Li})$, on peut déterminer précisément H_0 . Le moment magnétique du lithium 9 est obtenu par la fréquence centrale du spectre d'asymétrie qui conduit à la valeur absolue du facteur g_I .

2) Moments quadrupolaires

Ayant identifié les transitions du spectre d'asymétrie (Fig. 17), on effectue des différences des fréquences et la fréquence de Larmor s'annule (relation (1)). Il ne reste donc plus que la partie quadrupolaire. Le champ cristallin V_{zz} étant impossible à mesurer directement, on doit connaître le moment quadrupolaire d'un autre isotope du lithium et effectuer une mesure d'asymétrie sur ce noyau. C'est ce qui a été fait sur le lithium 7 ($\nu_Q(^7\text{Li}) = 54.7(3)$ kHz et $|Q_s(^7\text{Li})| = 37.0(8)$ mb). On obtient ainsi les deux moments quadrupolaires cherchés : $|Q_s(^8\text{Li})| = 28.7(7)$ mb et $|Q_s(^9\text{Li})| = 25.3(9)$ mb²⁸⁾. Il a également été effectué une mesure du moment quadrupolaire sur le lithium 11 : $|Q_s(^{11}\text{Li})| = 31.2(5)$ mb²⁹⁾.

En conclusion, cette méthode est très puissante puisqu'elle permet d'accéder à des moments quadrupolaires très faibles et surtout parce qu'elle permet de travailler sur des niveaux atomiques de spin $J = 1/2$ puisque J n'intervient pas directement dans l'extraction du résultat. Cela permet de faire des mesures dans de nombreux noyaux légers qui ont en général une configuration atomique relativement simple ou même d'effectuer des mesures directement sur des ions mono chargés.

II. La méthode ABMR (Atomic Beam Magnetic Resonance)

L'étude de l'interaction faible est un problème fondamental en physique nucléaire. Une grande partie de cette force est due à la contribution des neutrons. Or, toute observable intervenant dans la fonction d'onde des neutrons est très difficile à mesurer directement car

ces particules ont une charge nulle. L'anomalie hyperfine est un moyen d'atteindre ce type de grandeur dans la mesure où elle permet de quantifier l'influence de la distribution magnétique nucléaire sur la structure hyperfine. En effet, si on a une idée précise de la répartition volumique du magnétisme dans le noyau, on pourra alors étudier des effets de non-conservation de parité dans des séries isotopiques et mieux connaître la contribution des neutrons à la fonction d'onde nucléaire.

L'étude de l'effet Bohr-Weisskopf consiste à mesurer la constante magnétique de structure hyperfine A et le facteur gyromagnétique nucléaire g_I à haute précision pour en faire le rapport (voir 1^{ère} partie § II.A.3). Une des méthodes les plus précises pour atteindre cet objectif est sans doute l'expérience ABMR sur des atomes de spin atomique $1/2$ c'est-à-dire où la contribution magnétique intervient seule dans la structure hyperfine. En appliquant un champ magnétique moyen sur l'atome, on peut utiliser la formule de Breit-Rabi (voir 1^{ère} partie § IV.C) pour extraire g_I . A est obtenu en mesurant la différence d'énergie des 2 niveaux hyperfins de l'état fondamental atomique.

A. Principe expérimental

Les ions monochargés doivent être séparés en masse par un accélérateur de type ISOLDE. Ils sont ensuite neutralisés dans un état de spin atomique $1/2$. On les polarise avec un faisceau laser par pompage optique et on effectue un balayage radiofréquence en présence d'un ou plusieurs aimant suivant qu'on mesure A ou g_I . On ré-effectue un pompage optique et on détecte la fluorescence émise. Le système expérimental est représenté schématiquement figure 18.

B. Mesure de A

Pour mesurer A , on utilise uniquement l'aimant C en champ faible (voir figure 18). Le niveau hyperfin $F=1$ étant rempli par le premier pompage optique (voir figure 19), on balaye la radiofréquence quand les atomes passent dans l'aimant C. A chaque fois que la fréquence ν_c correspond à une transition $\Delta m=0$ ou ± 1 , l'atome est excité sur le niveau $F=2$. Le deuxième pompage optique viendra alors exciter l'atome et on détectera, avec un photomultiplicateur, un

nombre de photons de désexcitation proportionnel à l'intensité de la raie de radiofréquence. On obtient un spectre dont la raie centrale donne exactement $\Delta\nu$ (voir ³⁰⁾). Comme $\Delta\nu = A(I+1/2)$, on en déduit A avec une précision de 10^{-7} .

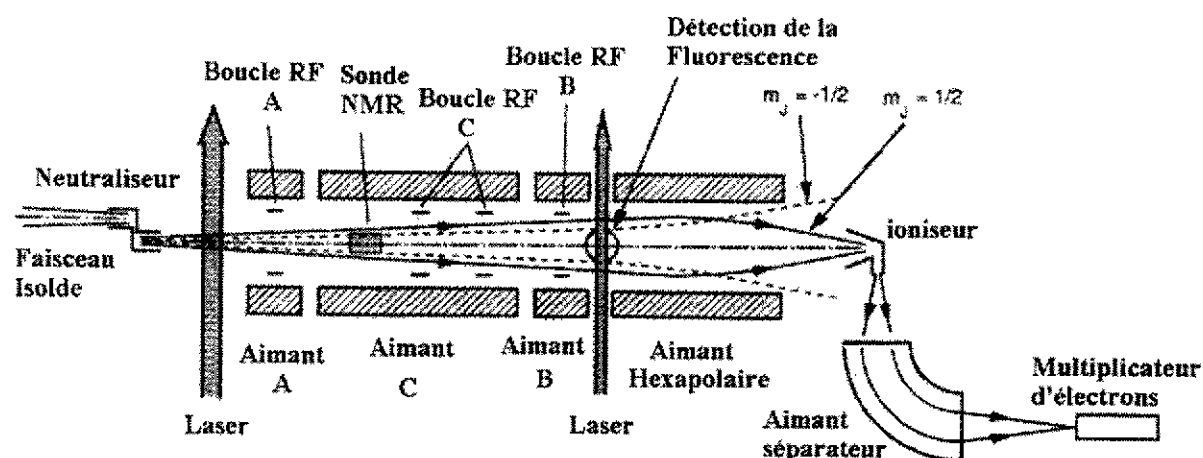


Figure 18 : Système expérimental ABMR ³⁰⁾.

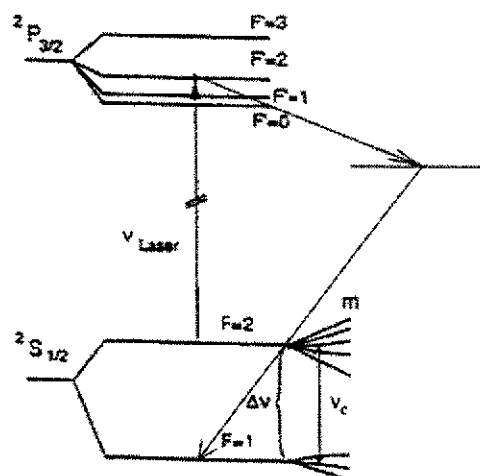


Figure 19 : Pompage optique et balayage en fréquence en champ faible pour la mesure de A .

C. Mesure de g_I

En champ intermédiaire, l'énergie de chaque niveau Zeeman s'écrit comme :

$$W_Z = -\frac{\delta W_0}{2(2I+1)} - mg_I \mu_B H_0 \pm \frac{\delta W_0}{2} \sqrt{1 + \frac{4m}{2I+1} x + x^2}.$$

Prenons 2 transitions RF de $\Delta F=0$ (dans chaque multiplet et donc correspondant à des m_J opposés) faisant intervenir les mêmes paires de m (par exemple $m=0 \rightarrow m=1$ pour $m_J=1/2$ et $m=1 \rightarrow m=0$ pour $m_J=-1/2$: voir figure 21). Comme $\Delta m=1$ et -1 , on a :

$$\nu_{+1/2} = g_I \mu_B H_0 + \frac{\delta W_0}{2} \left[\sqrt{1 + \frac{4m_{1+}}{2I+1} x + x^2} - \sqrt{1 + \frac{4m_{2+}}{2I+1} x + x^2} \right] \text{ et}$$

$$\nu_{-1/2} = -g_I \mu_B H_0 - \frac{\delta W_0}{2} \left[\sqrt{1 + \frac{4m_{2+}}{2I+1} x + x^2} - \sqrt{1 + \frac{4m_{1+}}{2I+1} x + x^2} \right].$$

La différence $\delta\nu=2\mu_B H_0 g_I/h$. Si on connaît précisément H_0 , on extrait simplement g_I en mesurant ces deux fréquences.

La triple boucle RF

Il s'agit donc de mettre en évidence ces deux transitions et on utilise pour cela 3 champs magnétiques : 2 faibles et un intermédiaire (voir Fig. 20).

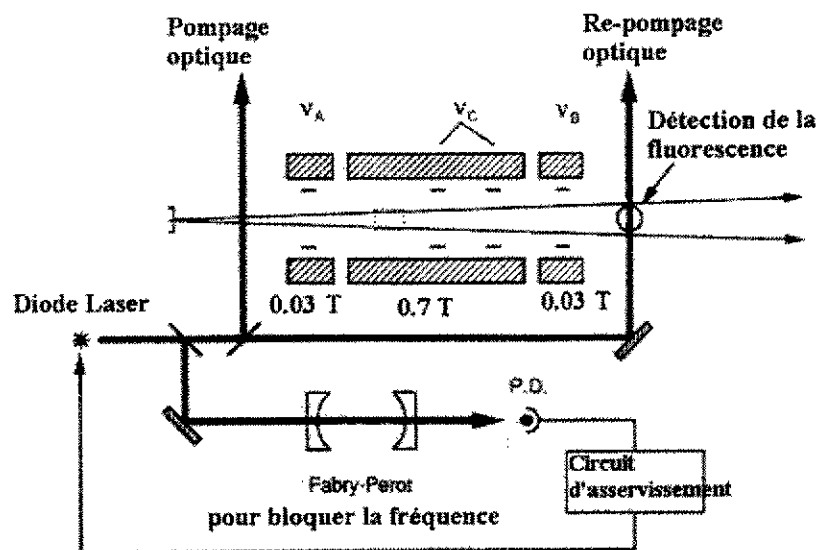


Figure 20 : Détail des 3 boucles pour la mesure de g_I .

Le premier pompage optique est utilisé pour peupler complètement le niveau $F=1$ (voir Fig. 21). En champ faible, les électrons se répartissent uniformément sur les 3 niveaux Zeeman du fondamental.

La radiofréquence qu'on va appliquer sur les boucles A et B entre les niveaux $m_-=0$ et $m_+=0$ a été déterminée par la mesure de A (elle correspond à ν_{AB} sur la figure 21).

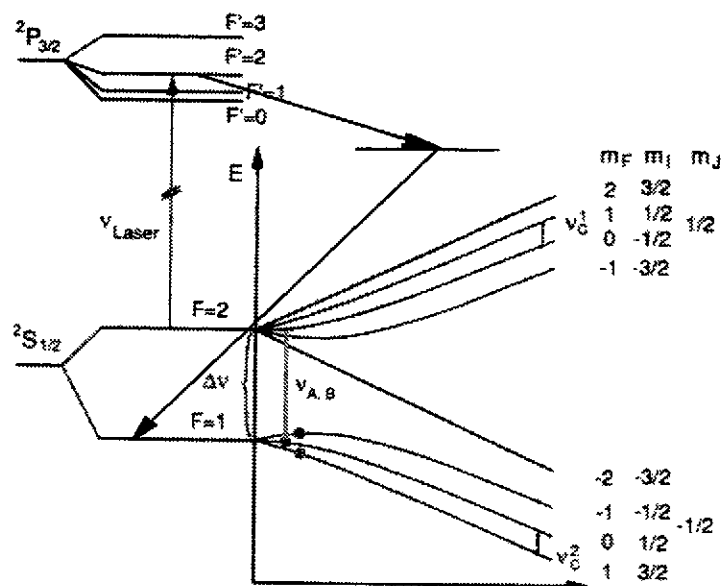


Figure 21 : mesure des 2 radiofréquences ν_c avec le double pompage optique.

- Si l'électron est sur le premier niveau $m=1$, le passage des atomes dans la boucle A (champ faible) ne l'excitera pas sur le niveau supérieur (ν_{AB} n'agit pas). On effectue un balayage en radiofréquence de la boucle C avec application d'un champ intermédiaire (les niveaux se sont alors écartés). Lorsque la fréquence correspond à ν_c^2 (Fig. 21), l'électron sera excité sur le niveau $m=0$. En arrivant dans la boucle B qui possède exactement le même champ faible que A (les niveaux se sont resserrés), l'atome sera excité sur l'état $F=2$ grâce à la radiofréquence ν_{AB} . A la sortie de ces 3 boucles, les atomes pourront être excités par le deuxième pompage optique et on détectera avec le photomultiplicateur, un nombre de photons proportionnel à l'intensité de la transition $\Delta m=1$.
- Si l'électron est sur le niveau $m=0$, le passage des atomes dans la boucle A les excitera par ν_{AB} sur l'état $m=0$ supérieur. Dans l'aimant C, le balayage en fréquence effectué l'excitera à ν_c^1 sur le niveau supérieur $m=1$. Dans l'aimant B, la fréquence ν_{AB} ne pourra pas l'atteindre et faire redescendre l'électron sur un niveau de $F=1$. A la sortie de la triple boucle, le pompage optique permettra la détection d'un nombre de photons proportionnel à l'intensité de ν_c^1 .
- Si enfin l'électron est sur le niveau Zeman $m=-1$, l'atome ne verra pas ν_{AB} dans la boucle A. Dans la boucle C, il ne verra ni ν_c^1 ni ν_c^2 lorsqu'on balayera la fréquence. Il restera donc sur $m=-1$ d'où il ne sera pas excité sur $F=2$ par ν_{AB} dans la boucle B.

La différence $\nu_c^2 - \nu_c^1$ permet d'extraire g_I si on connaît H_0 . Celui ci est mesuré avec une sonde NMR qu'on introduit dans la boucle C. On obtient ainsi une précision de 10^{-6} sur le facteur gyromagnétique.

En conclusion sur ce type de mesure, les expériences ABMR sont extrêmement délicates à réaliser à cause d'une part de la triple boucle : les trois champs magnétiques ne doivent absolument pas s'interpénétrer. D'autre part, les expériences en ligne imposent de neutraliser un faisceau de 60 kV d'énergie vers des vitesses thermiques. Cette étape est effectuée avec une énorme perte en efficacité.

III. La double spectroscopie laser et RF avec des trappes.

Le principe des trappes à ions ayant été longuement détaillé dans le cours de David Lunney, nous montrerons simplement les applications que cette technique peut fournir à l'étude de la structure hyperfine. Ce sont des expériences qui sont effectuées sur des ions monochargés et donc les transitions laser utilisées pour le pompage optique se situent dans l'UV.

Lorsqu'on utilise une trappe de Paul, la précision qu'on atteint grâce à un balayage radiofréquence est telle qu'on peut caractériser la structure hyperfine complète de l'atome. Ceci permet d'atteindre les interactions octupolaire et hexadécapolaire noyau-électron. Cependant, il faut pour cela que les spins du niveau atomique fondamental de l'ion et du noyau soient supérieurs ou égal à 2 (voir ³¹).

Lorsqu'on utilise une trappe de Penning, on a accès, grâce au champ fort, au facteur gyromagnétique nucléaire et donc à l'anomalie hyperfine.

A. Détermination de la structure hyperfine complète

Ce type d'expérience donne accès au moment magnétique, au moment quadrupolaire, au moment octupolaire et au moment hexadécapolaire du noyau. On utilise pour cela une trappe de Paul à l'intérieur de laquelle réside un faible champ Zeeman. Par ailleurs, comme le

balayage en fréquence est effectué sur des micro-ondes (ou radiofréquence) et que ce type de longueur d'onde est très grand devant l'amplitude du mouvement des ions dans la trappe (~ 10 cm \gg ~ 1 mm) on n'a pas d'effet Doppler au 1^{er} ordre. C'est ce qu'on appelle l'effet Lamb-Dicke qui est extrêmement bien détaillé dans le cours de David Lunney.

L'expérience est effectuée selon le même principe que pour la mesure de A avec la méthode ABMR. Les ions piégés dans la trappe sont soumis à un pompage optique laser UV qui va vider un niveau hyperfin pour en remplir un autre. Une fois que l'on ne détecte plus rien sur le photomultiplicateur, le niveau inférieur est plein. On peut alors envoyer le balayage en radiofréquence qui excitera tous les niveaux Zeeman du niveau hyperfin. A chaque fois que la valeur de la fréquence correspondra à une transition Zeeman, l'atome sera excité sur le niveau supérieur et le laser, toujours présent, ira peupler le niveau hyperfin suivant. On détectera alors un nombre de photons proportionnel à l'intensité de la raie Zeeman (voir Fig. 22).

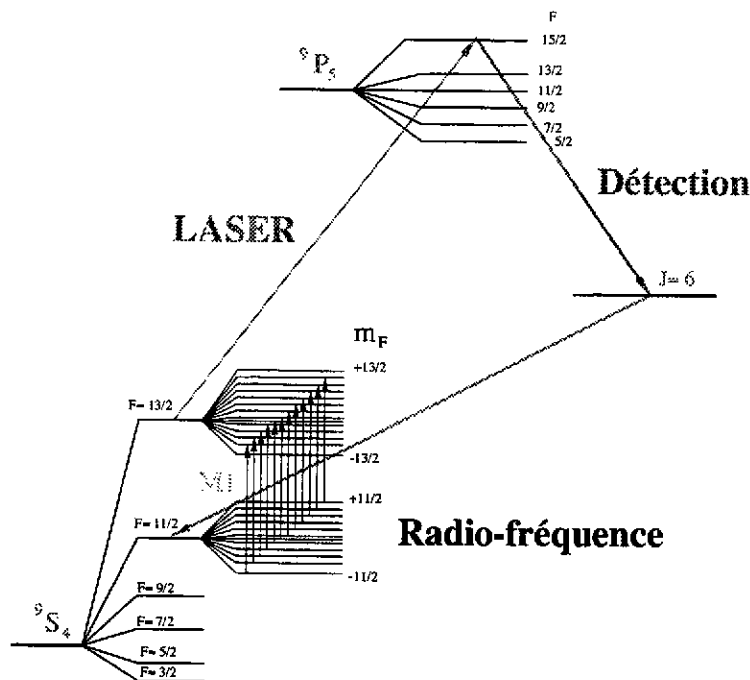


Figure 22 : Pompage optique et balayage en fréquence entre $F=11/2$ et $F=13/2$.

Toutes les transitions permises sont ainsi obtenues et le centre de gravité du spectre est fonction de A , B , C (constante octupolaire de structure hyperfine) et D (constante hexadécapolaire). On effectue au moins 4 mesures sur 4 niveaux hyperfins et on déduit ces

constantes à haute précision. En effet la largeur d'une raie étant d'une centaine d'Hertz, on obtient des précisions de l'ordre du Hz sur des transitions d'une dizaine de GHz (voir ³²).

B. Mesure du facteur g_I

On utilise pour cela une trappe de Penning et le champ appliqué à la trappe (≈ 6 T) provoque un effet Paschen-Back sur les niveaux hyperfins des ions piégés. Comme pour la méthode ABMR, on étudie des ions dont le spin électronique de l'état fondamental est $1/2$ pour n'avoir que la contribution magnétique des électrons. La figure 23 représente l'éclatement d'un niveau $J=1/2$ sous l'effet d'un champ fort.

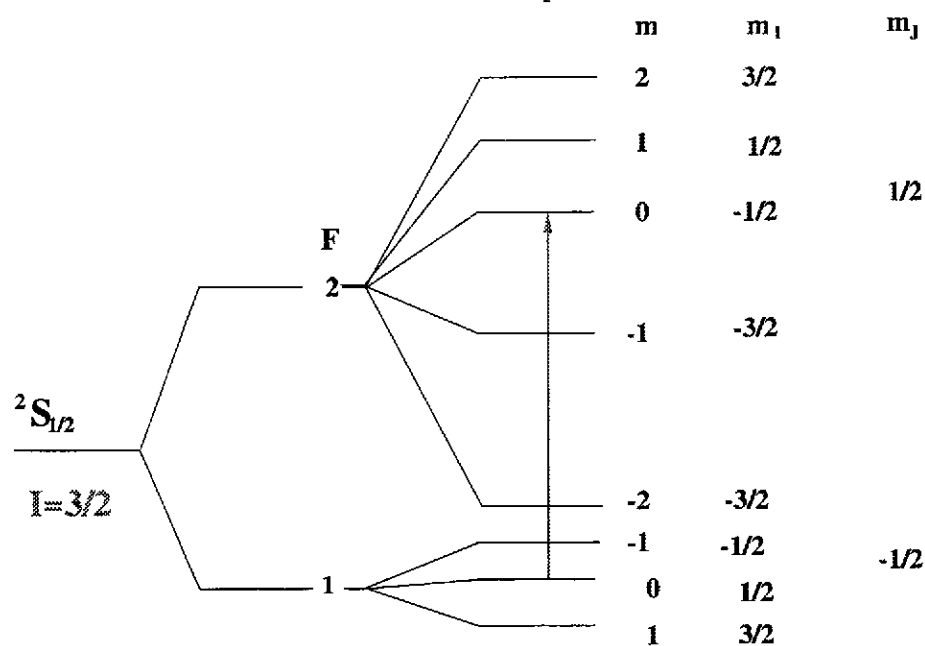


Figure 23 : Effet Paschen-Back sur un niveau $J=1/2$.

L'énergie de chaque sous-niveaux peut s'écrire : $W_{PB} = \mu_B H_0 m_J g_J - \mu_B H_0 m_I g_I + A m_I m_J$

Pour le niveau $F=1$ et $m=0$: $W_{PB}(F=1, m=0) = -\frac{1}{2} \mu_B H_0 g_J - \frac{1}{2} \mu_B H_0 g_I - \frac{A}{4}$.

Pour le niveau $F=2$ et $m=0$: $W_{PB}(F=2, m=0) = \frac{1}{2} \mu_B H_0 g_J + \frac{1}{2} \mu_B H_0 g_I - \frac{A}{4}$.

La transition entre ces 2 niveaux : $\nu(0 \rightarrow 0) = \mu_B H_0 g_J + \mu_B H_0 g_I$.

On l'obtient par un balayage en radiofréquence de la même manière qu'avec la trappe de Paul (sur toutes les transitions $\Delta m=0$) : elle correspond à la fréquence centrale du spectre.

Pour déterminer g_I on doit connaître H_0 et g_J . Ces deux paramètres (indépendant de l'isotope étudié) sont obtenus sur un isotope pair-pair voisin dans lequel il n'existe pas de structure hyperfine ($I=0$) avec le même type de balayage radiofréquence. Entre 2 niveaux Paschen-Back ($1/2$ et $-1/2$ par exemple) on mesure $\Delta\nu_0 = \mu_B H_0 g_J$. Comme la fréquence cyclotron des ions dans une trappe Penning $\omega_c = (e/m)H_0$ peut être mesurée très précisément, on en déduit H_0 puis g_J . On remonte alors à g_I qu'on peut extraire avec une précision de 10^{-4} (voir ³³).

En résumé sur ce chapitre, la double spectroscopie laser+radiofréquence permet d'augmenter considérablement la précision de la spectroscopie laser seule. Par la méthode β -NMR on mesure des moments quadripolaires à haute précision ce qui est idéal pour les éléments légers et les noyaux proches des couches magiques.

Par la méthode ABMR, on peut étudier l'anomalie hyperfine par la mesure de la constante magnétique de structure hyperfine et du facteur gyromagnétique nucléaire à haute précision (10^{-6}).

En utilisant des trappes, on peut avoir accès au quatrième ordre de la structure hyperfine dans le cas des trappes de Paul et au facteur g_I pour des trappes Penning.

CONCLUSION

Nous avons montré dans ce cours que la spectroscopie laser est un outil puissant et spécifique pour déterminer des constantes fondamentales en physique nucléaire. Cette méthode originale permet de mesurer les moments nucléaires des noyaux ainsi que leur variation du rayon de charge indépendamment des modèles nucléaires (du moins en ce qui concerne μ_I et $\delta\langle r^2 \rangle$). Elle est donc un complément indispensable à la spectroscopie nucléaire puisqu'elle regarde le noyau "de l'extérieur".

Nous avons exposé deux techniques principalement utilisées en spectroscopie laser : la spectroscopie colinéaire directement sur un faisceau produit par un séparateur d'isotopes, et la spectroscopie par ionisation résonante couplée à la désorption d'atomes (exemple de l'expérience COMPLIS) qui permet l'étude des noyaux réfractaires non produits par un séparateur d'isotopes. La spectroscopie laser telle qu'elle est utilisée avec COMPLIS possède de nombreuses applications notamment pour les sources d'ions laser. En effet, dans un séparateur en masse, plusieurs éléments peuvent coexister dans un même faisceau isobarique et souvent un élément d'intérêt peut être noyé dans un élément parasite de même masse. Si on sélectionne à la source le Z intéressant en l'ionisant par plusieurs étapes laser, l'élément parasite restera sous forme d'atome et ne pourra pas être accéléré. On aura donc un faisceau parfaitement pur de Z et de A donné. Cette perspective est très attrayante pour les projets de production de faisceaux exotiques riches en neutrons. Les éléments produits par fission peuvent être séparés en masse mais les isobares sont tellement nombreux qu'il sera nécessaire de les séparer très sélectivement et donc par laser.

Une autre application de la spectroscopie laser est la double spectroscopie laser + radiofréquence. Elle permet d'augmenter considérablement la précision sur les moments nucléaire. On peut par exemple mesurer les moments quadrupolaires des noyaux légers ou de ceux proches des couches magiques (de l'ordre de la dizaine de mb) par la méthode β -NMR. Pour l'étude de l'anomalie hyperfine, fondamentale pour une meilleure caractérisation de la fonction d'onde du neutron, la méthode ABMR permet de mesurer A et le facteur g_I à haute précision. Enfin, grâce à l'utilisation des trappes à ions, on peut obtenir une précision de 10^{-9} sur la mesure des constantes de structure hyperfine A et B . On peut également mesurer, quand

les spins le permettent, la contribution octupolaire et hexadécapolaire à la structure hyperfine ce qui permet d'atteindre des grandeurs jamais mesurées directement dans le noyau. Un tel programme peut être mis en application sur les accélérateurs de faisceaux exotiques type SPIRAL.

Bibliographie

- 1) H. Kopfermann, Nuclear Moments, Academic Press, New York (1958).
- 2) C. Cohen-Tanoudji *et al.*, Mécanique quantique tome I et II, Hermann (1977).
- 3) S. Büttgenbach *et al.*, Z. Phys. 283, 303 (1977).
- 4) A. Bohr et V.F. Weisskopf, Phys. Rev. 77, 94 (1950).
- 5) Relativistic Effects in Atoms, Molecules and Solids, édité par G.L. Malli (Plenum, New-York, 1983).
- 6) R.M. Sternheimer, Phys. Rev. 164, 10 (1967).
- 7) W. Childs et K. Cheng, Phys. Rev A30, 667 (1984).
- 8) H.E. White et A.Y. Eliason, Phys. Rev. 41, 753 (1933).
- 9) J. Bauche et A. Crubellier, Journal de Physique 31, 429 (1970).
- 10) J.J. Labarthe, J. Phys. B6, 1761 (1973).
- 11) A.-M. Mårtensson et S. Salomonson, J. Phys. B15, 2115 (1982).
- 12) W.H. King *et al.*, Z. Phys 265, 207 (1973).
- 13) K. Heilig et A. Steudel, At. Data Tab. Nucl. Data Tables 14, 613 (1974).
- 14) G. Torbhom *et al.*, Phys. Rev. A31, 2038 (1985).
- 15) E.C. Seltzer, Phys. Rev. 188, 1916 (1969).
- 16) S.A. Blundell *et al.*, Z. Phys. A321, 31 (1985).
- 17) J.E. Rosenthal et G. Breit, Phys. Rev. 41, 459 (1932).
- 18) Th. Hilberath *et al.*, Z. Phys. A342, 1 (1992).
- 19) W. Myers et W. Swiatecki, Nucl. Phys. A410, 61 (1983).
- 20) G. Breit et I.I. Rabi, Phys. Rev. 38, 2082 (1931).
- 21) N. Boos *et al.*, Phys. Rev. Lett. 72, 2689 (1994).
- 22) J.M.G. Levins *et al.*, Phys. Rev. Lett. 82, 2476 (1998).
- 23) G.S. Hurst *et al.*, Rev. of Mod. Phys. 51, 567 (1979).
- 24) S. Libermann *et al.*, Revue de Cethedec Ondes et Signal, NS 83-2, Paris (1983).
- 25) F. Le Blanc *et al.*, Phys. Rev. C60, 054310 (1999).
- 26) W. Geithner *et al.*, à paraître dans Hyperfine Interactions (1999).

- 27) F.D. Corell *et al.*, Phys. Rev. C28, 862 (1983).
- 28) E. Arnold *et al.*, Z. Phys. A331, 295 (1988).
- 29) E. Arnold *et al.*, Phys. Lett. B281, 16 (1992).
- 30) H.T. Duong *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A325, 465 (1993).
- 31) C. Schwartz, Phys. Rev. 97, 380 (1955).
- 32) O. Becker *et al.*, Phys. Rev. A48, 3546 (1993).
- 33) G. Werth, Physica Scripta T59, 206 (1995).